



# Faisceaux exotiques par méthode ISOL Développements pour l'ionisation par laser et l'ionisation de surface

F. Hosni

## ► To cite this version:

F. Hosni. Faisceaux exotiques par méthode ISOL Développements pour l'ionisation par laser et l'ionisation de surface. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Paris Sud - Paris XI, 2004. Français. NNT : . in2p3-00024594

**HAL Id: in2p3-00024594**

**<https://theses.hal.science/in2p3-00024594>**

Submitted on 28 Nov 2005

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**UNIVERSITE PARIS XI-Orsay  
Institut de Physique Nucléaire d'Orsay**

**THESE**

Présentée pour obtenir

**Le Grade de Docteur en Sciences de  
l'Université Paris XI**

**Spécialité Physique Nucléaire**

Soutenue publiquement par

**Faouzi HOSNI**

**Le 21 Octobre 2004**

**Sujet :**

**Faisceaux Exotiques par méthode ISOL  
Développements pour l'Ionisation par Laser et  
l'Ionisation de Surface**

**Jury**

M. Alex C. MUELLER  
M. Robert FRASCARIA  
M. Jacques LETTRY  
M. Marc HUYSE  
M. Dominique GOUTTE  
M. David LUNNEY  
M. Adel TRABELSI

Directeur de thèse  
Président  
Rapporteur  
Rapporteur

## Remerciements

Je voudrais tout d'abord remercier la directrice de l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay, Dominique Guillemaud-Mueller pour m'avoir accueilli au sein de ce laboratoire et permis d'effectuer ma thèse dans les meilleures conditions.

Je remercie tous les membres du jury pour avoir accepté de juger cette thèse et plus particulièrement les deux rapporteurs Marc Huyse et Jacque Lettry qui ont assuré l'écriture des rapports malgré leur emploi du temps chargé. Merci à Robert Frascaria pour avoir accepté d'être le président du jury et merci à tous les autres membres : Dominique Goutte et David Lunney.

Je suis très reconnaissant à Adel Trabelsi qui a accepté l'invitation de ma soutenance malgré ses engagements professionnels ainsi que l'effort qu'il a fourni afin que je sois attaché au Centre National des Sciences et Technologies Nucléaires de la Tunisie.

Je voudrais exprimer ma plus profonde estime et reconnaissance à Alex C. Mueller, mon responsable de thèse, pour m'avoir accompagné et encadré lors de ce travail. Il n'a eu de cesse de me soutenir pendant ces trois ans, de m'apporter une grande confiance. J'ai énormément apprécié tant ses qualités humaines que scientifiques et aimé partager un peu de ses connaissances. Ces reconnaissances vont également à Said Essabaa, pour m'avoir suivi de près, pour sa patience et son regard critique, auxquels s'ajoutent ses grandes compétences techniques et scientifiques.

Je tiens également à exprimer ma profonde reconnaissance à Christophe Lau, pour ses remarques critiques et son aide dans la correction de ce manuscrit. Je voudrais lui exprimer toute ma gratitude et mon estime pour ce travail de titan.

Un grand merci à Brigitte Roussière et François Le Blanc qui ont toujours été disponibles pour répondre à mes questions en physique ainsi qu'à leurs conseils perspicaces qui m'ont aidé à bien mener ce travail.

Je remercie vivement Robert Gacognolle et Jacques Obert qui ont su, dans les moments les plus difficiles de la thèse, apporter leur aide afin de mener à bien la réalisation de mes expériences.

J'exprime ma profonde gratitude à Joel Arianer pour les discussions fructueuses que j'ai eues avec lui ainsi que pour son aide et ses remarques avisées.

Je remercie tous les membres du groupe des Sources d'Ions, Hervé Croizet, Michel Ducourtieux, Hervé Leffort, Christophe Vogel, pour leur accueil sympathique et pour l'environnement de travail qu'ils m'ont offert. Je remercie particulièrement Jean Claude Potier pour sa grande disponibilité et sa présence durant mes expériences sur le Séparateur d'Isotopes Hors Ligne (S.I.H.L).

Toute ma reconnaissance est également adressée à l'équipe de physiciens du projet PARRNe dont j'ai apprécié la disponibilité et la présence pendant les différentes expériences en ligne (Photofission, ALCA-PARRNe,  $^{81}\text{Ga}$ ).

Je voudrais remercier aussi tous mes amis (ou plutôt) mes frères, Mohamed BENSETTI, Zaatar MAKNI, Maher CHEIK MHAMED, Mohsen JEMAI, Miloud TAFERGUENIT... la liste est très longue... s'ils ne sont pas là sur ce papier, ils savent qu'ils sont dans mon cœur.

Enfin je garde une pensée très particulière pour mes parents (Ali et Janette) sans qui je ne serai arrivé jusque là, merci à ma famille est plus particulièrement à mes frères Rachid et Nabil, Heithem et Aloulou, Bien sur à toi ma chère dodo (Hela Diouani) pour ton amour et ton soutien inconditionnel, ta patience et ta compréhension.

<b>Introduction.....</b>	<b>4</b>
--------------------------	----------

## **Chapitre. I. Développement des faisceaux radioactifs riches en neutrons par séparation en ligne ..... 7**

### **I.1 La physique avec les faisceaux radioactifs riches en neutrons ..... 7**

I.1.1 La Mesure de masses de noyaux riches en neutrons.....	7
I.1.2 Les effets de couches dans les noyaux.....	9
I.1.3 L'étude des formes de noyaux par la spectroscopie laser.....	10
I.1.4 L'astrophysique nucléaire.....	11
I.1.5 La synthèse des noyaux superlourds.....	12

### **I.2 La production des faisceaux d'atomes radioactifs riches en neutrons ..... 13**

I.2.1 Mécanisme de la fission.....	14
Paramètre de fissibilité.....	14
Chaleur de la réaction de fission.....	15
Variation de l'énergie potentielle.....	16
I.2.2 Limite du modèle de la goutte liquide.....	16

### **I.3 Les projectiles induisant la fission ..... 17**

I.3.1 La fission thermique.....	17
I.3.2 La fission induite par des neutrons rapides.....	19
I.3.2.1 Le dispositif PARRNe.....	20
I.3.2.2 Les productions à PARRNe 2.....	22
I.3.3 La photofission.....	23
I.3.4 Etude de l'épaisseur d'une cible d'UCx pour l'exploitation de la photofission dans la séparation en ligne.....	31

## **Chapitre. II. Etude et fabrication des pastilles de carbure d'uranium ..... 34**

### **II.1 Problématique liée au développement de cibles pour la production d'ions radioactifs séparés en ligne..... 34**

### **II.2 La diffusion dans une cible de production ..... 35**

II.2.1 Diffusion granulaire.....	36
II.2.2 Désorption.....	38

### **II.3 Les cibles d'uranium ..... 39**

II.3.1 Paramètres recherchés pour le développement d'une cible d'uranium.....	39
II.3.2 Justification de l'utilisation d'un composé réfractaire.....	40
II.3.3 Caractéristiques des composés réfractaires de l'uranium.....	40
II.3.4 Propriétés de cible de carbure d'uranium utilisée à l'IPN d'Orsay.....	41

<b>II.4</b>	<b>Technique expérimentale de fabrication .....</b>	<b>41</b>
II.4.1	Procédé de fabrication .....	41
II.4.2	Appareillage de chauffage .....	43
II.4.3	Préparation des pastilles .....	44
<b>II.5</b>	<b>Analyse des pastilles d'UCx .....</b>	<b>45</b>
II.5.1	Analyse cristallographique des pastilles .....	45
II.5.2	Analyse des pastilles par le microscope à balayage .....	47
II.5.3	Principe de la méthode .....	48
II.5.4	Caractéristique technique du MEB utilisée .....	48
<b>II.6</b>	<b>Conclusion .....</b>	<b>53</b>

## **Chapitre. III. La production de noyaux radioactifs riches en neutrons ..... 54**

<b>III.1</b>	<b>Introduction .....</b>	<b>54</b>
<b>III.2</b>	<b>L'ionisation de surface .....</b>	<b>55</b>
III.2.1	Description de l'ensemble cible-source à ionisation de surface .....	56
<b>III.3</b>	<b>La détection .....</b>	<b>59</b>
<b>III.4</b>	<b>Mesure de la production des isotopes de Rb et Cs... 62</b>	
III.4.1	Détermination de la production .....	62
III.4.2	Les résultats expérimentaux .....	64
<b>III.5</b>	<b>Mesure des temps de relâchement du Rb et du Cs... 67</b>	
III.5.1	Mesure indirecte .....	67
III.5.1.1	Calcul de production des isotopes dans la cible .....	69
III.5.1.2	Temps de relâchement de Rb et Cs .....	70
III.5.2	Mesure directe .....	72
III.5.3	Discussion des résultats .....	76
III.5.4	Comparaison des rendements de fission relatifs mesurés avec ceux de la littérature 79	
<b>III.6</b>	<b>Conclusion .....</b>	<b>81</b>

## **Chapitre. IV. Développement d'une source laser pour la production des faisceaux d'ions séparés en ligne ..... 83**

<b>IV.1</b>	<b>Intérêts de la source laser .....</b>	<b>83</b>
<b>IV.2</b>	<b>Etude de l'ionisation résonante .....</b>	<b>84</b>
IV.2.1	L'ionisation résonante à deux photons .....	86
IV.2.2	Schéma d'ionisation de Sn .....	89
<b>IV.3</b>	<b>Calcul de l'efficacité d'ionisation .....</b>	<b>90</b>
<b>IV.4</b>	<b>Développement d'un prototype .....</b>	<b>91</b>
<b>IV.5</b>	<b>Dispositif expérimental .....</b>	<b>95</b>
IV.5.1	Les galettes de microcanaux .....	96
IV.5.2	Le système laser .....	98

<b>IV.6 Production d'un faisceau de <math>Cs^+</math></b>	<b>100</b>
IV.6.1 Etalonnage de la source	101
IV.6.2 Essai de la source sur le séparateur SIHL	103
<b>IV.7 Production d'un faisceau de <math>Sn^+</math></b>	<b>103</b>
IV.7.1 Pression de vapeur de Sn	103
IV.7.2 Mesure de flux de Sn	104
IV.7.3 Estimation du flux total d'atomes	106
IV.7.4 Mesure expérimentale de l'efficacité d'ionisation	108
IV.7.4.1 Séparation isotopique des ions de Sn	110
<b>IV.8 Caractérisation optique du faisceau de <math>Sn^+</math></b>	<b>111</b>
IV.8.1 La notion d'émittance	111
IV.8.2 Dispositif expérimental pour la mesure d'émittance des faisceau $Cs^+$ et $Sn^+$	114
IV.8.3 Procédure de mesure	115
IV.8.4 Les mesures d'émittances	116
IV.8.4.1 Le faisceau de $Cs^+$ produit par la source à ionisation de surface	116
IV.8.4.2 Emittance du faisceau $Sn^+$ produit par photoionisation	117
IV.8.5 Comparaison des résultats	118
<b>IV.9 Conclusion</b>	<b>119</b>
<b>Chapitre. V. Conclusion et perspectives</b>	<b>120</b>

# Introduction

Les études en physique nucléaire ont porté jusqu'à présent sur environ deux milles cinq cent noyaux radioactifs. Ces noyaux, avec les 263 noyaux stables constituent le paysage nucléaire actuel. Cependant, ce paysage est loin d'être complet puisqu'il reste plus de trois milles noyaux radioactifs à découvrir, en particulier ceux excédentaires en neutrons [Mue 00].

L'étude de ces noyaux exotiques très riches en neutrons permettrait de développer nos connaissances sur la structure nucléaire, comme par exemple l'évolution de la masse, les effets de couche, la distribution des nucléons dans leur creuset nucléaire etc., jusqu'à déterminer la limite de cohésion d'un noyau (drip-line) prévue par la théorie [Cas 00].

Afin d'accéder à ces noyaux exotiques, il est nécessaire de disposer de faisceaux d'isotopes riches en neutrons à des intensités excédent substantiellement  $10^{11}$  ions/s. Pour produire ces noyaux radioactifs, il existe deux méthodes complémentaires : la première méthode est la séparation d'isotopes en ligne (ISOL), la seconde méthode est la fragmentation en temps de vol du projectile [Mue 01]. Cette dernière a été développée dans les années 80 à Berkeley aux Etats-Unis et au GANIL en France. Elle consiste à fragmenter sur une cible mince des ions lourds d'énergie supérieure à 30 MeV/nucléons. L'énergie perdue dans cette réaction est inférieure à 10% de l'énergie du faisceau incident. Les produits de fragmentation sortent de la cible indépendamment de sa nature pour être triés par un séparateur d'isotope. Comme la vitesse des produits de fragmentation est proche de celle du projectile, le temps de transport n'est que de quelques  $\mu$ s. Cela permet d'étudier les noyaux de très courte période de décroissance radioactive (inférieure à la milliseconde). Cependant cette méthode de production à l'inconvénient de fournir des faisceaux radioactifs ayant une grande dispersion en énergie et en angle. De plus, l'utilisation d'une cible mince limite l'intensité des faisceaux d'ions produits. Cette intensité ne dépasse pas au mieux  $10^{-4} I_0$ , avec  $I_0$  l'intensité du faisceau incident. Des projets utilisant ce processus de production ont été réalisés dans le monde comme notamment RIPS à RIKEN au Japon, GSI en Allemagne ou RIBLL à Lanzhou en Chine [Mue 00]. Une description sommaire d'autres installations de ce type est donnée dans les références [Tan 98] et [Nol 98].



Dans le cas de la séparation d'isotopes en ligne (ISOL), une cible épaisse est exploitée pour produire les noyaux radioactifs. Ceci permet de produire des faisceaux beaucoup plus intenses que par fragmentation en vol. Comme la cible est épaisse, les atomes radioactifs produits sont piégés dans la cible. Pour les extraire avant qu'ils soient perdus par décroissance radioactive, il est nécessaire de chauffer la cible à haute température. Les atomes radioactifs sortant de la cible se propagent par effusion vers la source d'ions où ils sont ionisés. Les ions formés sont extraits par une haute tension de quelques dizaines de kV puis transportés pour la séparation électromagnétique. Comparée à la fragmentation en vol, la séparation d'isotopes en ligne fournit des faisceaux d'ions radioactifs de faible émittance et de faible dispersion en énergie. Cette méthode a été mise en œuvre à Louvain la neuve. Elle est typiquement exploitée sur l'installation SPIRAL au GANIL. Cette technique est la plus accessible pour développer les faisceaux d'ions radioactifs aux intensités exigées. Parmi les installations exploitant cette technique, nous pouvons citer ISAC à TRIUMF au Canada [ISA], HRIBF à Oak Ridge aux états Unis [Gar 97], ISOLDE au CERN [Hab 97] etc.

Pour produire des noyaux riches en neutrons, la réaction nucléaire exploitée dans le cadre de cette thèse est la fission induite par des particules de haute énergie. Cette technique a l'avantage d'assurer le contrôle des réactions de fission par un faisceau primaire et d'utiliser comme cible des noyaux lourds non fissiles comme par exemple  $^{238}\text{U}$  ou  $^{232}\text{Th}$ . Cependant, il n'est techniquement pas possible d'irradier directement avec un faisceau d'ions de haute intensité une cible de production. Par conséquent, il s'agit d'induire la fission par des particules neutres générées par l'interaction d'un faisceau d'ions sur un convertisseur approprié. Nos travaux expérimentaux ont montré la faisabilité d'un tel mode de production, à partir d'un faisceau de deutons pour générer des neutrons rapides (projet SPIRAL-2 [SPI 01]) ainsi qu'à partir d'un faisceau d'électrons pour des gammas de Bremstrahlung (projet ALTO [Ess 03]). Ces travaux seront présentés dans le premier chapitre. Ce chapitre débutera par un aperçu de quelques thèmes principaux de la physique avec les faisceaux radioactifs riches en neutrons.

Pour obtenir des faisceaux d'isotopes riches en neutrons aux intensités requises, il est indispensable d'aboutir à des cibles d'uranium épaisses où les produits de réaction puissent sortir le plus rapidement possible. C'est à dire de réaliser des cibles pouvant maintenir une structure poreuse stable à haute température. Ceci est l'un des principaux défis technologiques à résoudre. Mes travaux portant sur ce domaine seront présentés dans le chapitre II.

Afin d'approfondir nos connaissances sur la fission induite par neutrons rapides et sur les performances de la cible décrite au chapitre II, nous avons réalisé une expérience en ligne dans le cadre d'une collaboration EURISOL [Lau 03]. Cette expérience a porté sur l'évolution de la production des isotopes d'alcalins riches en neutrons vers les plus courtes périodes de décroissance radioactives. Le chapitre III décrit la réalisation de cette expérience, l'étude des temps de relâchement des noyaux produits et l'analyse des résultats obtenus.

De plus, il ne suffit pas de parvenir à produire des faisceaux d'isotopes radioactifs intenses. Il faut qu'ils aient une faible contamination, en particulier isobarique. En effet, les isotopes d'intérêt excédentaires en neutrons, sont largement moins produits que les isobares plus proches de la vallée de stabilité. Par conséquent un faisceau d'isotopes d'intérêt peut être fortement contaminé au point d'être inexploitable. Afin de pouvoir produire des faisceaux d'une grande pureté chimique, l'ionisation résonante laser est une technique efficace et adaptée. Nos travaux pour mettre en œuvre une telle source d'ions à l'IPN d'Orsay seront décrits dans le chapitre IV. Ce chapitre présentera les moyens mis en œuvre pour caractériser les performances et l'émission de la source.

# Chapitre. I. Développement des faisceaux radioactifs riches en neutrons par séparation en ligne

## *I.1 La physique avec les faisceaux radioactifs riches en neutrons*

Dans le but d'élargir d'avantage nos connaissances sur la cohésion des noyaux, l'étude en physique nucléaire du plus grand nombre de noyaux loin de la vallée de stabilité ( $N/Z \approx 0.6$  à 4) est fondamentale. En effet, grâce à la mesure des propriétés de ces noyaux de nombreux modèles nucléaires ont été développés. Cependant, leurs applications aux noyaux dans les conditions « extrêmes » [Pen 95] montrent une incompatibilité flagrante, comme notamment la divergence entre l'énergie de liaison expérimentale et celles calculées à l'aide de modèles théoriques pour des isotopes de l'étain [Anl 95, Lun 03] et de l'oxygène [GAN 90] à partir d'une masse critique. Par conséquent, les études des noyaux exotiques et en particulier ceux riches en neutrons aux moyens des modèles théoriques sont limitées, seuls les faisceaux intenses d'isotopes riches en neutrons offrent la possibilité de dévoiler ces limites par l'introduction de nouveaux phénomènes de la cohésion des noyaux dans les conditions extrêmes [Roe 95, Hen 97]. Ces faisceaux permettent aussi d'accéder à de nouvelles informations sur l'existence des noyaux riches en neutrons et leur limites de stabilité, leur modes de décroissance radioactive, leur masses, leur tailles et formes, la force de découplage de la distribution des protons et des neutrons [Tan 99]. Un autre type d'information de grand intérêt que l'on peut atteindre aussi avec ces faisceaux est la mesure des sections efficaces de production des isotopes qui permettent de compléter les modèles nucléaires des réactions.

Dans les paragraphes suivants nous donnerons un aperçu sélectionné de quelques thèmes majeurs de la physique des faisceaux riches en neutrons.

### **I.1.1 La Mesure de masses de noyaux riches en neutrons**

La masse est une des propriétés principales caractérisant le noyau. Sa mesure présente un ensemble d'informations d'une grande richesse sur les différentes interactions (électromagnétiques, faibles, fortes) dans les noyaux, ainsi que la prédiction de leur stabilité.

Actuellement, il existe plusieurs méthodes pour mesurer les masses des noyaux radioactifs [Lun 03], la plus précise est celle par trappe de Penning utilisée dans l'expérience ISOLTRAP à ISOLDE au CERN et dans l'expérience IGISOL auprès du cyclotron de Jyväskylä. Cette méthode permet de couvrir toute la gamme de masse de 32 à 203 u.m.a. et d'atteindre une résolution  $\delta m/m$  de l'ordre de  $10^{-8}$  [Bla 03b]. On notera également deux autres méthodes de mesure basées sur le même principe et limitées en gamme de masse : la mesure en temps de vol et la mesure par détermination de la fréquence cyclotron.

La première consiste à mesurer la masse ( $m$ ) d'un noyau de charge  $q$  selon l'expression suivante :

$$\frac{B\rho}{\bar{v}} = \gamma \frac{m}{q} \quad (\text{I.1})$$

$\gamma$  est le facteur de Lorentz relié par la vitesse de l'ion  $\bar{v}$  selon la relation suivante

$$\gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{\bar{v}^2}{c^2}}} \quad (\text{I.2})$$

$c$  est la célérité de la lumière.

A partir de la connaissance de la rigidité magnétique  $B\rho$  du séparateur ainsi que la vitesse de l'ion déterminée par son temps de vol entre deux points nous pouvons remonter à sa masse. Cette méthode est utilisée au SPEG (Spectromètre à Perte d'Energie) au GANIL. Elle permet d'atteindre une résolution en masse de  $5.10^3$  [Bim 95]. Egalement, si on associe à cette technique un détecteur mince on a accès à la perte d'énergie du faisceau. Il en découle que la connaissance de cette dernière et le temps de vol permettent d'obtenir une identification précise de tous les isotopes même les nouveaux. L'inconvénient des mesures de masse avec cette technique, c'est qu'elles se limitent aux noyaux ayant une masse inférieure à 70 uma. Cette limitation est due à la rigidité du transport du faisceau [Char 98].

La deuxième méthode pour la mesure des masses des noyaux se base sur la détermination de la fréquence cyclotron d'un ion dans un champ magnétique. Cette fréquence est déduite à partir de l'équation I.1 sous-jacente de ne pas tenir de l'effet relativiste ( $\gamma = 1$ ). Elle est donnée par :

$$f_c = \frac{\bar{v}}{2\pi} = \frac{qB}{2\pi m} \quad (\text{I.3})$$

$f_c$  est égale à l'inverse de la période du tour de l'ion. A partir de sa valeur nous pouvons déterminer la masse du noyau. Un spectromètre de ce type est MISTRAL du CSNSM. Il est installé à ISOLDE au CERN [Lun 03]. Cet appareil permet d'analyser des faisceaux d'ions ayant un flux minimal de  $10^3$  atomes/s. Son pouvoir de résolution est de  $10^5$ .

Il existe plusieurs modèles théoriques prédisant la masse des noyaux, en particulier celle des plus riches en neutrons. Sur la figure I.1 on porte quelques exemples de ces modèles

[Aud 03] appliqués aux isotopes de l'étain. Nous remarquons que ces prédictions reproduisent bien les mesures pour les noyaux proches de la ligne de stabilité mais divergent au fur et à mesure que l'écart entre le nombre de neutrons et le nombre de protons augmente. Pour étudier ce problème, il est nécessaire de produire des faisceaux de plus en plus intenses d'isotopes riches en neutrons. Ces faisceaux offrent la possibilité de mesurer les masses des noyaux d'intérêt avec précision. La disponibilité de ces mesures nous permettra de comparer les modèles théoriques ainsi que de les raffiner afin de les rendre plus réalistes.

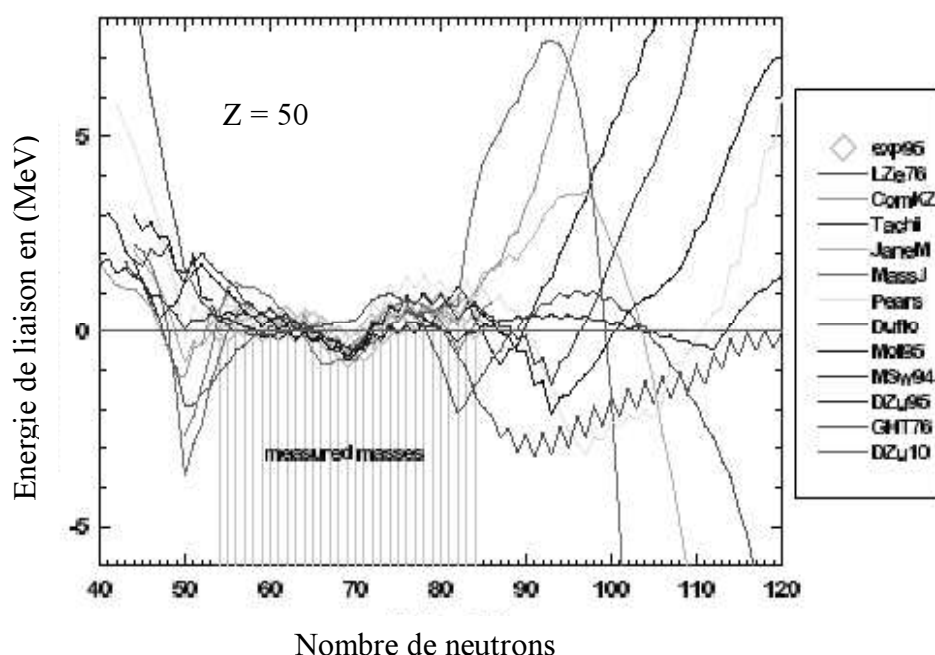


Figure 1.1 : Comparaison des différents modèles de masse de Sn.

### I.1.2 Les effets de couches dans les noyaux

L'étude de l'évolution de la structure en couche des noyaux riches en neutrons au moyen de la séquence de leurs états excités est une question d'actualité en physique nucléaire. Cette étude fait intervenir généralement un grand nombre de particules en modes collectifs vibrationnels ou rotationnels en interaction effective. De même l'étude de nouvelles zones de déformation nucléaire prévues par la théorie est aussi envisagée.

De nombreux phénomènes inattendus ont été découverts sur les comportements des noyaux radioactifs riches en neutrons comme notamment le changement des nombres magiques 2, 8, 20, 28, 50, 82 et 126 quand la déformation change, ainsi le  $^{110}\text{Zr}$  par exemple devient doublement magique avec  $Z = 40$  et  $N = 70$  [SPI 01]. D'autre part dans les noyaux à grand isospin la répartition des neutrons excédentaires se fait à une extension radiale très loin du cœur des nucléons, formant ainsi une peau de neutrons. Egalement, l'interaction spin-orbite provoque un changement du potentiel moyen [Dob 94, SPI 01]. Les noyaux riches en neutrons, en particulier ceux qui sont situés autour de la double fermeture de couche ( $N = 50$ ,

$Z = 28$ ) et ( $N = 82, Z = 50$ ) (Fig. I.2) sont d'un intérêt particulier pour expliquer l'origine du changement de nombres magiques. Leur étude permet de caractériser leur stabilité ainsi que leur mode de décroissance radioactive. La production des noyaux radioactifs riches en neutrons avec une intensité suffisante est un défi tant sur le plan expérimental que technique. La fission de l'uranium est un moyen prometteur pour produire ces types de noyaux. Elle permettrait de surmonter ces limites et élargir nos connaissances sur la matière nucléaire. La disposition de résultats expérimentaux sur l'évolution de la double fermeture de couche autour du noyau  $^{132}\text{Sn}$  et du  $^{78}\text{Ni}$  est un bon élément pour tester nos connaissances actuelles sur les interactions des systèmes à plusieurs corps.

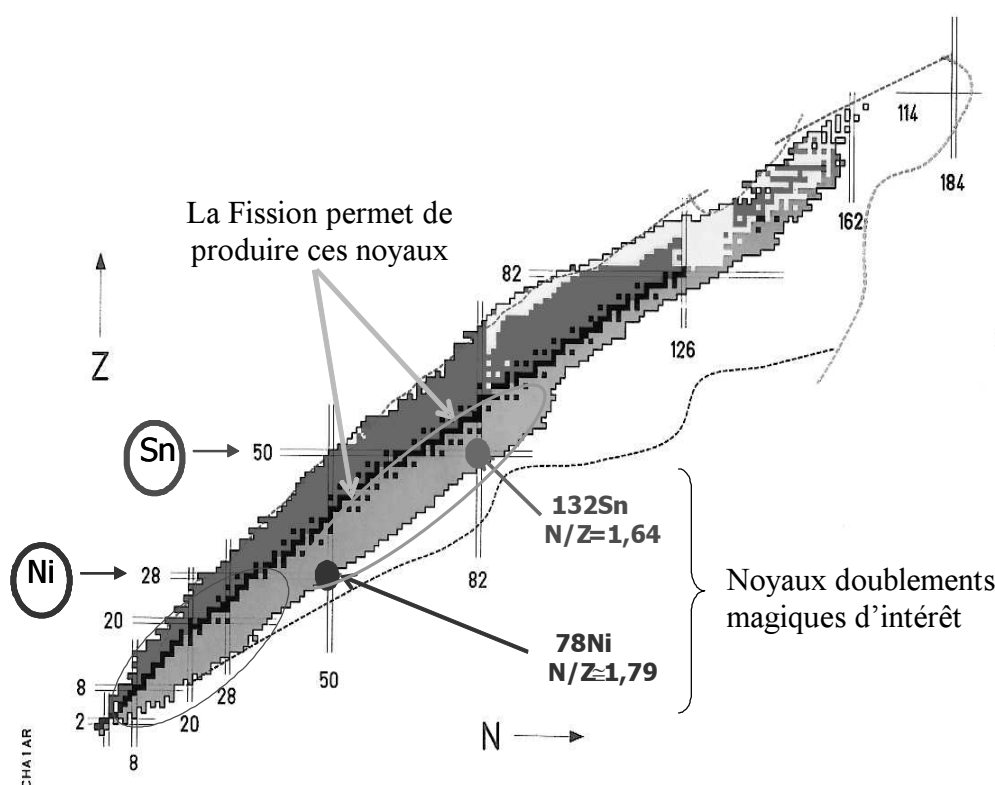


Figure I.2 : Carte de paysage nucléaire

### I.1.3 L'étude des formes de noyaux par la spectroscopie laser

L'étude de la forme du noyau est d'une importance considérable en physique nucléaire, en effet elle permet une meilleure compréhension de la distribution des protons et des neutrons dans leur creuset nucléaire ainsi que leur force de couplage. Cette forme est déterminée par la mesure du rayon nucléaire et du moment quadripolaire électrique qui renseigne sur la distribution des charges dans le noyau. D'autre part la mesure du moment dipolaire magnétique informe sur l'interaction du nucléon avec son creuset nucléaire. Pour

étudier la forme des noyaux radioactifs, le principe de l'expérience consiste à balayer la longueur d'onde du laser sur une large gamme de fréquences de façon à obtenir toutes les transitions hyperfines. Un exemple d'installation basée sur ce principe est l'expérience COMPLIS à ISOLDE au CERN [Bla 03]. Elle utilise la spectroscopie laser colinéaire. Cette installation a une sensibilité de 100 à 1000 atomes/s. Elle permet une étude des éléments radioactifs de période supérieure à la milliseconde et ceux difficilement accessible du fait de leur faible tension de vapeur.

Les développements des lasers de puissances accordables en longueur d'onde ont permis des applications en physique d'un grand essor en particulier la méthode d'analyse spectroscopique appelée RIS [Hur 79] *Resonance Ionization Spectroscopy*. Cette méthode a été initialement développée par G.S Hurst et M.G. Payne du Oak Ridge National Laboratory pour étudier l'effet de Jesse (mesure du taux d'ionisation des particules alpha dans un gaz d'hélium contenant des impuretés en gaz rare). Son principe consiste en l'ionisation multiphotonique résonante des isotopes d'un élément chimique dans un état quantique donné et la détection des ions ainsi créés. Par l'association d'un spectromètre à cette technique d'analyse (RIS) une meilleure sélectivité chimique est obtenue : c'est la méthode RILIS (*Resonance Ionization Laser Ion Source*). Cette dernière peut être utilisée comme on va la voir dans le dernier chapitre pour produire des faisceaux d'ions chimiquement séparés.

#### **I.1.4 L'astrophysique nucléaire**

Les faisceaux d'isotopes radioactifs riches en neutrons constituent un important outil pour l'astrophysique nucléaire. Ils sont exploités pour étudier les modèles de l'évolution de la matière stellaire et de la nucléosynthèse [Tac 95, Lan 99]. Cette étude permet d'élargir nos connaissances sur les processus de formation des éléments chimiques dans la nature ainsi que leur abondance relative.

En effet, les noyaux riches en neutrons sont formés durant l'évolution stellaire à des conditions extrêmes de pression et de température. A la phase finale de l'évolution, les étoiles massives de 4 à 5 fois la masse solaire développent un cœur de fer qui s'effondre sous l'effet de gravitation en donnant un phénomène de supernova. Ce dernier génère un flux intense de neutrons favorisant la formation de nombreux noyaux riches en neutrons (plus lourd que le fer) par un processus de capture neutronique appelé processus r de capture rapide [Qia 03]. Les noyaux radioactifs formés par ce processus tendent à rejoindre la vallée de stabilité par décroissance  $\beta^-$ . Le bilan final de cette chaîne de réactions résulte d'une compétition entre les processus d'alimentation et les décroissances radioactives. Par conséquent les abondances relatives des noyaux de la chaîne de décroissance radioactive sont reliées au flux d'alimentation constitué essentiellement par des neutrons, ainsi qu'aux périodes de décroissance radioactives des noyaux formés.



D'autre part la connaissance des processus de formation des noyaux riches en neutrons plus lourds que le fer nécessite des mesures de sections efficaces des réactions du processus r. Vue la faiblesse de ces sections, celles-ci sont difficilement évaluées théoriquement. Cependant, l'étude de ces noyaux en laboratoire conduira aux mesures directes des sections efficaces du processus r de tous les éléments. Elle permettra aussi de fournir un ensemble de connaissances fondamentales sur les processus de formation des noyaux, leur masse, leur période de décroissance radioactive, leur spin, qui seront aussi utiles aux astrophysiciens afin de valider leurs modèles et nous donner des informations sur les conditions d'explosion des supernovas.

### I.1.5 La synthèse des noyaux superlourds

Le développement des faisceaux radioactifs de plus en plus intenses, offre la possibilité d'utiliser ceux-ci pour induire des réactions nucléaires comme la fragmentation, la dissociation électromagnétique, l'excitation coulombienne, la diffusion élastique et inélastique, les réactions de transfert, les réactions (p, n), la fusion [Tan 99]. Ces réactions avec les différents faisceaux radioactifs permettent d'atteindre un autre paysage de la matière nucléaire, à savoir, les éléments les plus lourds pouvant exister. Pour cela de grands efforts expérimentaux visent à élargir la palette des noyaux par l'atteint d'un ensemble de noyaux superlourds prédits autour de l'élément  $^{292}_{114}$  (élément doublement magique constitué de 114 protons et 178 neutrons). Cet ensemble de noyaux est atteint à partir de la fusion de différentes combinaisons de l'ensemble projectiles/cibles. Ils sont caractérisés par des états superdéformés et ont été observés pour une large gamme d'éléments, en particulier autour du noyau  $^{277}_{112}$  (élément déficient en neutrons constitué de 112 protons et 165 neutrons) dans l'expérience SHIP à GSI de Darmstadt [Hof 96]. Ils sont produits par réaction de fusion obtenue par l'irradiation d'une cible de  $^{208}\text{Pb}$  ou  $^{209}\text{Bi}$  par un faisceau stable de  $^{70}\text{Zn}$ . Egalement, d'autres d'un intérêt particulier peuvent être produits autour  $^{260}\text{No}$  et  $^{268}\text{Sg}$  par l'interaction d'un faisceau d'atomes radioactifs riches en neutrons de  $^{132}\text{Sn}$  sur une cible de  $^{130}\text{Te}$  ou de  $^{138}\text{Ba}$  [SPI 01].

L'utilisation des faisceaux d'atomes radioactifs riches en neutrons pour induire la fusion pourrait ouvrir la possibilité d'atteindre des noyaux lourds et superlourds d'une manière plus aisée, en particulier coté noyaux riches en neutrons. En effet, comme le montre la figure I.3, les faisceaux d'atomes qui présentent un excès de neutrons de plus en plus élevé permettent d'augmenter la barrière de fission du noyau composé qui se traduit par conséquent par une augmentation de la probabilité de survie du noyau composé. Les projectiles constitués d'atomes radioactifs riches en neutrons sont bien adaptés à la production d'atomes lourds radioactifs riches en neutrons comme notamment la production du  $^{176}\text{Er}$ ,  $^{178}\text{Yb}$ ,  $^{180}\text{Hf}$  par la fusion respective des faisceaux d'atomes radioactifs riches en neutrons de  $^{130}\text{Cd}$ ,  $^{132}\text{Sn}$ ,  $^{134}\text{Te}$ , sur une cible stable de  $^{40}\text{Ca}$  [SPI 01]. En revanche les projectiles constitués d'atomes stables favorisent la formation des noyaux déficients en neutrons, ils sont mal adaptés pour la



production de l'ensemble de noyaux recherchés autour de l'élément  $^{292}_{114}$  par conséquent seul les faisceaux de projectiles d'atomes radioactifs riches en neutrons le permet.

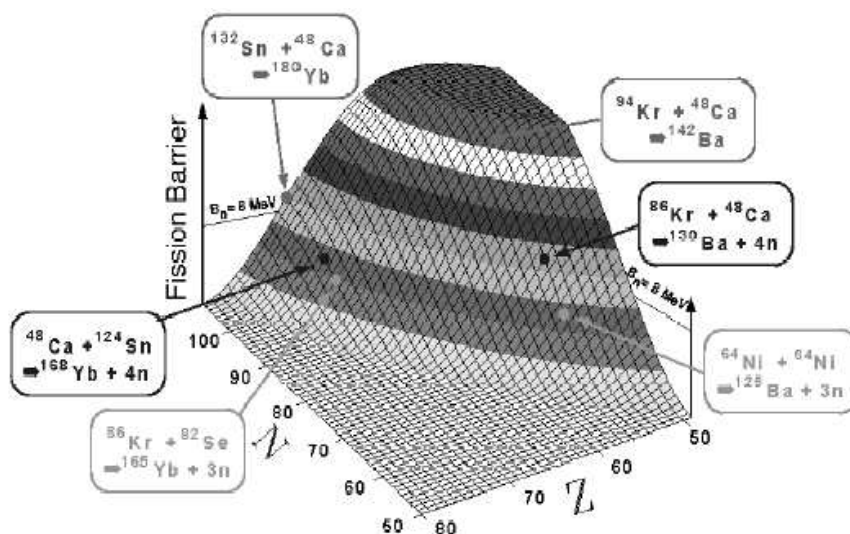


Figure 1.3 : Barrière de fission en fonction de nombre de masse  $A$  et nombre de charge  $Z$  des noyaux composés [SPI 01].

## 1.2 La production des faisceaux d'atomes radioactifs riches en neutrons

En 1938, O. Hahn et F. Strassmann ont découvert dans une cible d'uranium bombardée par des neutrons thermiques la présence de plusieurs éléments radioactifs ayant les propriétés chimiques du milieu du tableau de MENDELIEV (Césium, Strontium, Yttrium, Xénon, Baryum) [Hah 38]. Cela a amené L. Meitner et O. Frish en 1939 à introduire une nouvelle réaction nucléaire appelée la fission nucléaire qui est la décomposition d'un noyau lourd en deux fragments radioactifs de masses voisines possédant une énergie cinétique moyenne de 200 MeV à l'état excité riche en neutrons et qui se désintègrent pour rejoindre la vallée de stabilité par émission bêta [Mei 39]. Depuis cette découverte, la fission de l'uranium ainsi que des actinides est devenue la réaction principale considérée pour produire des noyaux radioactifs riches en neutrons.

Nous rappelons dans ce qui suit d'une façon classique une description sommaire de la fission basée sur le modèle de la goutte liquide ou on assimile le noyau par un fluide incompressible caractérisé par une distribution de charge uniforme [Frank 47]. En effet, ceci pouvant d'appréhender de façon utile la physique sous-jacente.

## I.2.1 Mécanisme de la fission

### Paramètre de fissibilité

En s'appuyant sur le modèle de la goutte liquide on peut expliquer la fission d'un noyau lourd sphérique par sa déformation lors de son excitation par les neutrons. Il subit une interaction forte due à une augmentation de l'énergie de surface et une diminution de l'interaction coulombienne. Pour les faibles déformation, Bohr et Wheeler ont proposé en première approximation une déformation quadripolaire selon l'axe de symétrie Oz du noyau [Boh 56]. La surface du noyau déformé est décrite en coordonnée polaire par :

$$R(\theta) = R_0 \left( 1 + \sum_i \varepsilon_i P_i(\cos\theta) \right) \quad (\text{I.4})$$

$R_0$  : Rayon du noyau en absence de déformation

$\varepsilon_i$  : Coefficient de déformation

$P_i(\cos\theta)$  : Polynôme de Legendre.

A partir de l'équation I.4 on peut déduire l'énergie de surface du noyau. Elle est proportionnelle à la surface de noyau. Son expression est décrite par :

$$E_s = E_{s0} \left( 1 + \frac{2}{5} \varepsilon^2 + \dots \right) \quad (\text{I.5})$$

$E_{s0}$  est l'énergie de surface du noyau du noyau sphérique en absence de l'interaction des neutrons. Son expression est donnée par le terme de surface de l'énergie de liaison de Bethe et Weizsäcker [Wei 35].

L'énergie d'interaction coulombienne du noyau déformé est :

$$E_C = E_{C0} \left( 1 - \frac{1}{5} \varepsilon^2 + \dots \right) \quad (\text{I.6})$$

$E_{C0}$  est l'énergie coulombienne du noyau sphérique en absence de l'interaction des neutrons. Son expressions est donnée par le terme coulombien de l'énergie de liaison de Bethe et Weizsäcker.

$$E_{s0} = a_s A^{2/3} \quad (\text{I.7})$$

$$E_{C0} = a_c \frac{Z^2}{A^{1/3}} \quad (\text{I.8})$$

$a_s$  et  $a_c$ , sont des constantes données respectivement par les termes de surface et coulombien de l'énergie de liaison Bethe et Weizsäcker.

Le paramètre de fissibilité est défini par le rapport de la variation de l'énergie coulombienne  $\Delta E_C = E_{C0} - E_C$  et de la variation de l'énergie de surface  $\Delta E_S = E_S - E_{S0}$ . Son expression est donnée par :

$$x = \frac{\Delta E_C}{\Delta E_S} = \frac{E_{C0}}{2E_{S0}} = \frac{Z^2 / A}{(Z^2 / A)_c} = \frac{Z^2 / A}{50} \quad (I.9)$$

$x$  est un paramètre qualitatif pour comparer le pouvoir fissile des noyaux. En effet pour  $x < 1$ , cette condition est vérifiée pour tous les noyaux lourds, elle se traduit par une énergie de surface supérieure à l'énergie coulombienne, par conséquent le noyau est stable vis-à-vis la fission.

Pour  $x > 1$ , le noyau est instable vis-à-vis la fission.

A titre comparatif on donne quelques valeurs du paramètre de fissibilité pour des noyaux fissiles. Tous les actinides ont un paramètre de fissibilité compris entre 0.68 et 0.76.

	<sup>208</sup> Pb	<sup>209</sup> Bi	<sup>232</sup> Th	<sup>235</sup> U	<sup>238</sup> U
x	0.65	0.7	0.74	0.77	0.76

Tableau I.1: paramètre de fissibilité des actinides.

Les noyaux fissiles sont ceux qui présentent un paramètre de fissibilité proche de 1, puis décroît quand la masse du noyau augmente. Ce calcul est valable que pour des noyaux sphériques proche de la limite de stabilité.

### **Chaleur de la réaction de fission**

La chaleur de la réaction pour une fission binaire normalisée par l'énergie de surface peut être déduite à partir des relations I.5 et I.6 au dessus.

$$\zeta(\text{fission binaire}) = 0.26 - 0.740 x \quad (I.10)$$

L'étude de cette expression en fonction du paramètre de fissibilité  $x$  montre que la réaction de fission binaire est exothermique que pour les valeurs de  $x$  comprises entre 0.35 et 1 ce qui est le cas de tous les actinides. Leur fission est accompagnée d'un dégagement important de chaleur (200 MeV/fission) qui se répartie sous forme d'énergie cinétique aux produits de fission. C'est pour cela que la réaction de fission est d'une grande importance d'un point de vue énergétique.

## Variation de l'énergie potentielle

La variation de l'énergie potentielle du noyau déformé est calculée à partir de la formule d'énergie de liaison de Bethe et Weizsäcker, son expression est donnée par :

$$\Delta E_p = \Delta E_s + \Delta E_c = \frac{2\varepsilon^2}{5} E_{s0} (1-x) \quad (\text{I.11})$$

L'équation montre que la variation de l'énergie potentielle des noyaux fissiles est positif lorsque  $0.35 < x < 1$  après elle devient négative lorsque les noyaux sont complètement séparés, ceci montre que l'énergie potentielle du noyau passe par un maximum appelé barrière de fission, il correspond à l'énergie qu'il faut fournir au noyau pour qu'il fissionne. Pour les actinides cette barrière de fission est de 5 à 6 MeV.

La description de la fission par le modèle de la goutte liquide a permis sa description quantitative et d'en tirer deux points fondamentaux :

- Le pouvoir fissile des noyaux est une fonction croissante du paramètre de fissibilité  $x$ . Son augmentation se traduit par une élévation du rapport  $Z^2/A$  du noyau, ceci apparaît surtout dans la famille des actinides. Ils ont un pouvoir fissile qui augmente au fur et à mesure qu'on s'approche aux plus exotiques.
- La mise en évidence de la barrière de fission des actinides de 5 à 6 Mev.

A partir de cette description nous pouvons déduire que les trois éléments  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$  sont des candidats préférentiels pour être utilisés comme cible de fission. Par ailleurs leur choix dépend du type de particule incidente et de son énergie.

### **I.2.2 Limite du modèle de la goutte liquide**

Plusieurs améliorations ont été portées sur le modèle de la goutte liquide. Le plus important est le modèle de gouttelette [Wag 91] dans lequel on additionne d'autres effets notamment la diffusion des nucléons à la surface et la différence des densités des neutrons et des protons à l'intérieur et à l'extérieur du noyau. Dans ce modèle on pourrait calculer la variation d'énergie coulombienne et de surface à l'extérieur du volume nucléaire [Rub 88, Bro 82]. Cependant dans le modèle de la goutte liquide ces variations sont nulles.

Malgré ces améliorations, le modèle de la goutte liquide reste incapable pour expliquer la fission spontanée, les effets de couches et d'appariement sur les propriétés des actinides et leur dynamique de scission, ainsi que la dominance de la fission asymétrique. Pour cela d'autres modèles dynamiques [Wil 64, Wag 91] ont été développés pour étudier la fission. Ceux-ci sont classés selon le degré d'approximation. Dans le modèle microscopique on étudie le mouvement d'un fluide nucléaire. Il est basé sur l'étude de mouvement des nucléons dans leur champ d'interaction nucléaire (modèle de Mottelson et Nilson, Wood Saxon). La

résolution de l'équation de Schrödinger en tenant compte des effets d'appariements des nucléons et de la dissymétrie du noyau, ainsi que l'effet de couche permet de déterminer la solution générale de l'équation Schrödinger. Elle est obtenue par la combinaison linéaire d'un très grand nombre d'états particule-trou. Ce traitement permet d'en tirer certaines propriétés de la fission mais malgré cela, le traitement microscopique est toujours complexe.

Le modèle stochastique permet de simplifier cette complexité, en effet il se base sur un traitement statistique étudiant les variables macroscopiques de la fission au court du temps. Ces variables sont indépendantes et dont l'évolution temporelle permet de décrire la fission.

### ***I.3 Les projectiles induisant la fission***

La fission d'un actinide peut être provoquée par des neutrons thermiques, des neutrons rapides, des gammas de Bremsstrahlung, ou des particules chargées. Cette variété de projectiles est en compétition, elle offre la possibilité d'atteindre des gammes particulières de masse dans la carte des noyaux radioactifs avec des productions favorables pour certaines. Notons que la fission peut aussi être obtenue en cinématique inverse c'est-à-dire par interaction des noyaux d'un actinide notamment de l'uranium sur une cible très mince. Ce type d'expérience est réalisé au centre de recherche GSI à Darmstadt en Allemagne.

Dans ce qui suit nous proposons de faire une revue générale des différentes méthodes de production d'atomes radioactifs riches en neutrons par fission de l'uranium en cinématique directe.

#### **I.3.1 La fission thermique**

La fission de l'uranium 235 induite par des neutrons thermiques donne naissance à des fragments de fission caractérisés par une distribution de masse asymétrique dont les maximums sont autour des masses 90 et 140 uma (Fig. I.4). Dans cette région de masse la section efficace peut atteindre 20 barns.

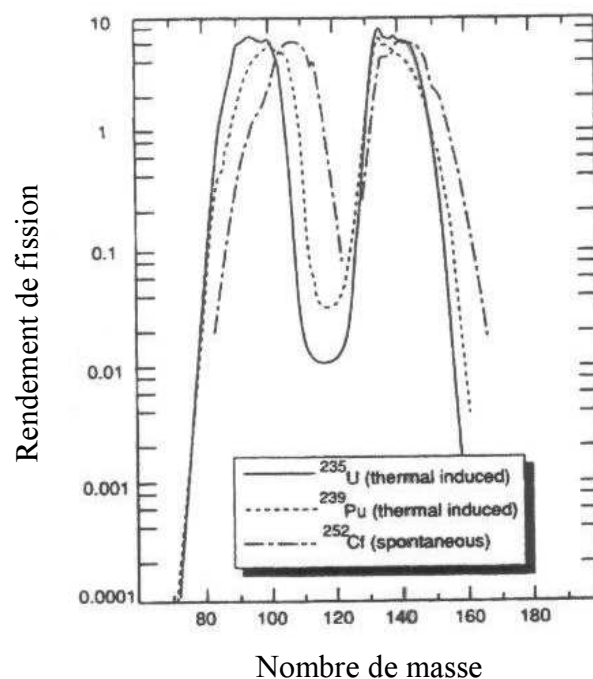


Figure 1.4: Distribution de masse des produits de fission

La fission induite par des neutrons thermiques a été la première réaction nucléaire utilisée pour produire des atomes radioactifs riches en neutrons par séparation en ligne [Kof 51]. Plusieurs installations de ce type ont été construites dont le flux de neutrons est issu d'un générateur de neutrons ou d'un réacteur [Rav 8-a]. L'avantage d'utiliser un flux de neutrons issu d'un réacteur est qu'il permet de produire des faisceaux d'ions très intenses. En effet, grâce à la disponibilité d'un flux élevé de neutrons de  $10^{14}$  neutrons/s/cm<sup>2</sup> à l'intérieur du réacteur, on peut induire dans la cible de fission un nombre de fissions qui peut atteindre  $10^{14}$  fissions/s [Gro 98]. Ainsi la production pour les noyaux radioactifs autour des bosses de fission peut atteindre  $3 \cdot 10^{12}$  atomes/s [Vig 95]. A titre d'exemple le projet MAFF (Munich Accelerator for Fissions Fragments) est dédié à produire des faisceaux très intenses riches en neutrons à partir de la fission d'une cible d'uranium 235. La cible sera constituée de 4 grammes d'uranium 235 sous forme de carbure d'uranium dispersé dans une matrice en graphite poreux. D'une géométrie cylindrique (diamètre  $\approx 25$  mm, longueur 60 mm), elle sera placée dans le cœur du réacteur FRM-II [Gro 98]. La puissance de 3 kW libérée par les réactions de fission devrait permettre un chauffage homogène de la cible à 2400 °C, ce qui assure une vitesse de diffusion maximum des produits de fission. Les temps de relâchements (hormis les éléments condensables) pourraient varier de 0.1 s à quelques secondes, ce qui permettrait à une partie substantielle des éléments de période comparables de s'échapper de la cible avant décroissance radioactive.

Malgré le fort intérêt scientifique que porte ce type d'installation, son exploitation reste une opération délicate d'un point de vue sûreté et technologique. Nous allons maintenant nous intéresser à deux autres modes de productions d'atomes radioactifs d'un intérêt particulier.

### I.3.2 La fission induite par des neutrons rapides

L'étude de la section efficace de fission de l'uranium 238 en fonction de l'énergie des neutrons montre un domaine d'un intérêt particulier au-delà de 2 MeV. Ce domaine se caractérise par une section efficace de fission qui évolue par palier. Sa valeur maximale est à 2 barn, se situe environ à 40 MeV [Lis 91]. Elle diminue pour les neutrons d'énergie supérieure à 40 MeV. La contribution des neutrons secondaires provenant de la fission de l'uranium, de l'ordre de 1%, est négligeable. Grâce à la disponibilité d'accélérateurs de forte puissance, des particules chargées peuvent par un processus de réaction nucléaire produire des neutrons rapides ayant une énergie supérieure à 2 MeV. Ces neutrons peuvent alors induire la fission de l'uranium 238. Cette idée a été proposée par Nolen [Nol 93]. Son principe consiste à fragmenter un faisceau de deutons sur un convertisseur correctement refroidit. Le flux de neutrons émis vers l'avant par la fragmentation du faisceau de deutons sur le convertisseur permet d'irradier la cible de fission à haute température constituée par de pastilles en carbure d'uranium ( $UC_x$ ). Ce carbure d'uranium s'avère être l'un des meilleurs (son étude sera développée dans le chapitre II). Les produits de fission formés, sortent de la cible par diffusion thermique. Celle-ci est favorisée par le chauffage de la cible à haute température.

Comme le montre la figure I.5, l'association d'une source d'ions et d'un séparateur d'isotopes permet respectivement d'ioniser les atomes radioactifs puis de les accélérer et transporter pour la séparation magnétique selon le rapport  $q/m$ . Cette méthode de production est dite méthode ISOL (Isotope Separation On Line). Elle a l'avantage de permettre d'atteindre le domaine d'application de la spectroscopie nucléaire aux noyaux radioactifs de périodes très courtes à condition que le délai qui s'écoule entre l'irradiation et la détection de l'élément d'intérêt soit faible devant sa période de décroissance radioactive. De plus, cette technique permet une mesure relativement précise des sections efficaces de production des isotopes.

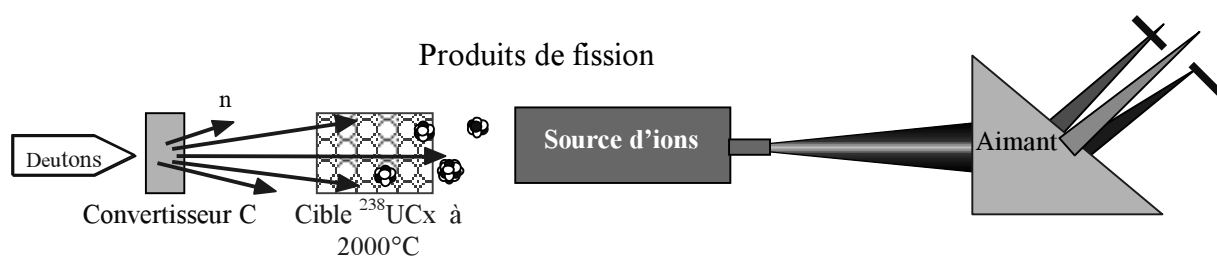


Figure I.5 : Principe de production des atomes radioactifs riches en neutrons par séparation en ligne.

Le découplage du faisceau de deutons et de la cible de fission a l'avantage de minimiser le dépôt d'énergie dans la cible de fission. Cette méthode permet de contourner l'effet destructeur du chauffage localisé provoqué par un faisceau d'ions (pic de Bragg) sur



une cible qui doit être à haute température. Avec un convertisseur convenablement refroidit, on pourrait utiliser des faisceaux primaires à des puissances supérieures à la centaine de kW.

### I.3.2.1 Le dispositif PARRNe

L'étude de la production des atomes radioactifs riches en neutrons basée sur la méthode ISOL fait partie du projet SPIRAL-II (Système de Production d'Ions Radioactifs Accélérés en Ligne). Elle a fait l'objet d'une R&D européenne coordonnée par le GANIL en collaboration avec l'IPN d'Orsay, le CRC de Louvain-la-Neuve, KVI Groningen et l'Université de Jyväskylä. Grâce à la mobilité de certains montages de PARRNe comme PARRNe 0 et PARRNe 1 [Cla 98], une campagne de mesures à différentes énergies a été programmée afin de déterminer les conditions optimales de production d'atomes radioactifs. Dans ce cadre des mesures de distributions angulaires et de distributions en énergie de neutrons ont été effectuées [Pau 00]. D'autres ont permis d'étudier l'influence de l'énergie des deutons sur le taux de productions des gaz rares radioactifs.

Pour étudier des ensembles cibles sources d'ions (ECS) adaptés à ce nouveau mode de production, : un séparateur d'isotopes en ligne a été installé auprès du Tandem de l'IPN d'Orsay (figure I.6). L'accélérateur tandem peut délivrer un faisceau de deutons d'énergie maximale de 28 MeV et d'intensité de 1  $\mu$ A [Waa 90]. Le flux de neutrons obtenu par l'interaction de ces deutons sur un convertisseur en graphite est caractérisée par une distribution en énergie centrée sur 10 MeV et ayant une largeur à mi hauteur (FWHM) de 10 MeV. La production de neutrons est maximum dans la direction incidente,  $8 \cdot 10^9$  neutrons/sr/ $\mu$ C à 0° [Mén 99]. La largeur de la distribution angulaire des neutrons pour une énergie de deutons de 28 MeV est de 26°.

Comme on l'a déjà vu, après leur diffusion dans la cible les produits de fission se déplacent par effusion vers la source d'ions où ils sont ionisés sous forme d'ions monochargés. Ils sont accélérés par une électrode d'extraction avec une différence de potentiel de 30 kV. Le faisceau ainsi extrait est transporté et trié en masse pour que les noyaux choisis soient identifiés ou étudiés dans la salle de mesures. Ainsi qu'on le voit sur la figure I.6, la salle d'irradiation est séparée de la salle de mesures par un mur en béton d'épaisseur 1.5 m dans lequel traverse la ligne du séparateur. Les 4 quadripôles électrostatiques ( $Q_1$ ,  $Q_2$ ,  $Q_3$ ,  $Q_4$ ) permettent de conduire de façon optimum le faisceau d'ions extraits dans l'électroaimant de séparation. La mesure du courant d'ions extraits dans cette ligne est faite sur une cage de Faraday placée juste avant le quadripôle  $Q_3$ . Grâce à l'électroaimant de rayon de courbure de 0,6 m et à déflexion de 65°, les ions sont séparés puis transportés à l'implantation sur une bande en mylar d'un dérouleur. La focalisation du faisceau au point d'implantation est assurée par quatre autres quadripôles électrostatiques. Le réglage des quadripôles se fait pour chaque mesure de masse par l'intermédiaire des cages de Faraday placées respectivement au plan focal image de l'aimant et devant le point



d'implantation, en bout de la ligne de transport. Afin de ne pas contaminer la cage de Faraday du point d'implantation par les isotopes radioactifs, la cible de fission n'est pas irradiée pendant l'optimisation du réglage des masses par des stables. Le contrôle en ligne de l'intensité du faisceau de deutons est assuré par l'intermédiaire d'une balise de neutrons qui permet de suivre l'évolution du niveau de bruit de fond neutronique au cours de temps.

Le dispositif de détection des ions radioactifs est constitué d'un détecteur germanium pour les photons  $\gamma$  et d'un scintillateur pour la détection des  $\beta$  sur un angle de  $4\pi$ . Il permet d'identifier les différents isotopes implantés sur la bande afin d'estimer leur taux de production ainsi que l'évolution de leur radioactivité au cours du temps. Les deux détecteurs sont placés au bout de la ligne située le plan focal se l'aimant de séparation.

Lors de l'interaction du faisceau de deutons avec le convertisseur, les neutrons échappés génèrent un bruit de fond énorme qui s'ajoute au flux de gammas émis par la cible de fission, et affecte nos mesures en ligne.

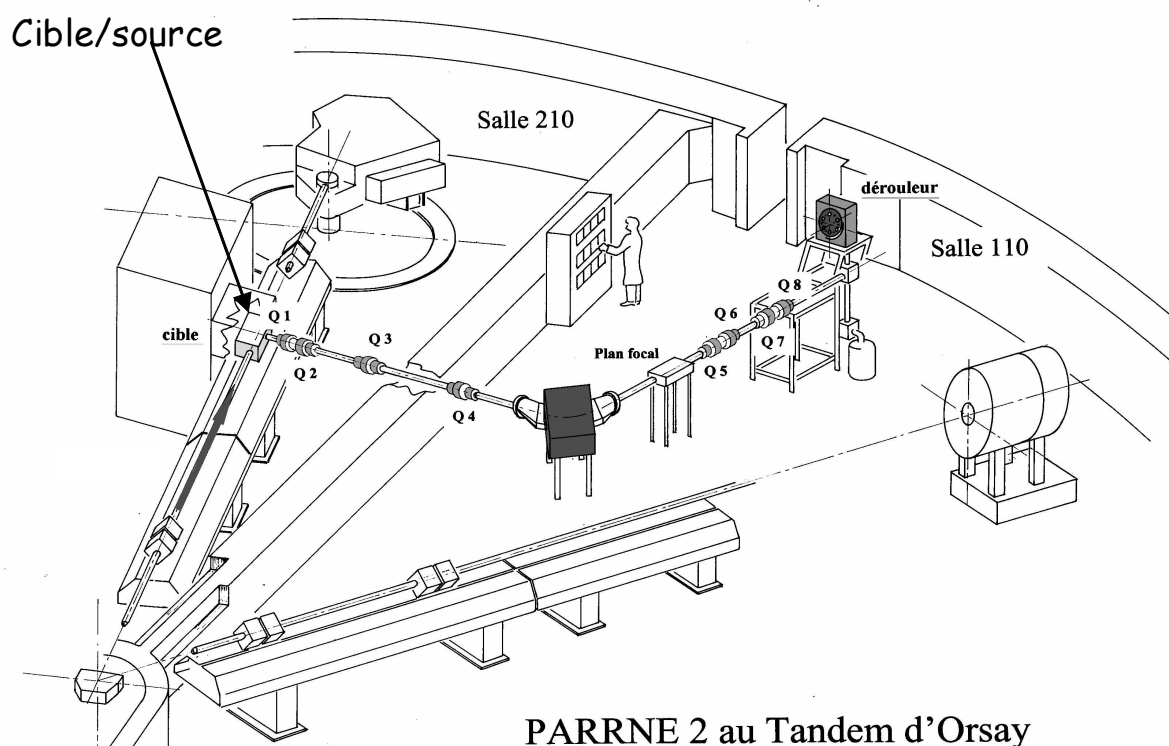


Figure I.6 : Principe de l'installation PARRNE 2 à l'IPN d'Orsay.

### I.3.2.2 Les productions à PARRNe 2

Pour chaque isotope, la production dépend de sa section efficace de production par fission, de la période de décroissance radioactive, des temps de diffusion et d'effusion, et de l'efficacité d'ionisation de la source. Dans le cas d'un faisceau de deutons de 26 MeV et d'intensité de  $1\mu\text{A}$ , le nombre de fissions induites dans la cible est de l'ordre de  $10^9$  fissions/s. Les productions mesurées par une source d'ions plasma MK5 sont données par la figure I.7. Malgré que l'accélérateur de deutons soit modeste, les productions sont intéressantes. Des expériences de physique ont pu être réalisées pour étudier les noyaux riches en neutrons de Ga et de Ge autour de la fermeture de couche  $N=50$ . Les résultats obtenus dans cette expérience sont prometteurs. Ils sont une première dans cette installation. Nous avons réussi à étudier la décroissance des noyaux de  $^{83}\text{Ga} \rightarrow ^{83}\text{Ge}$  et  $^{84}\text{Ga} \rightarrow ^{84}\text{Ge}$ . Cette étude a permis d'identifier les énergies des premiers états excités des Ge ayant un nombre de neutrons de 50 et 51 [Ver 03]. L'installation PARRNe 2 offre la possibilité de faire des développements technologiques afin d'améliorer la production des faisceaux de noyaux radioactifs riches en neutrons. Ces développements concernent principalement le relâchement de la cible des fragments de fission et les sources d'ions. Les résultats de ces travaux intéressent les grands projets d'installation de faisceaux radioactifs comme SPIRAL II auprès du GANIL.

Si on extrapole pour SPIRAL II [LIN 02], on peut s'attendre avec un faisceau de deutons de 40 MeV et de puissance 200 kW (correspond à une intensité de 5 mA) à obtenir un taux de fission dépassant facilement  $10^{13}$  fissions/s. Ce taux de fissions est compétitif à celui du projet MAFF, obtenu par des neutrons thermiques. De plus compte tenu du mode d'induction de fission on s'attend à produire une plus grande variété en noyaux radioactifs.

## Production /s/μA

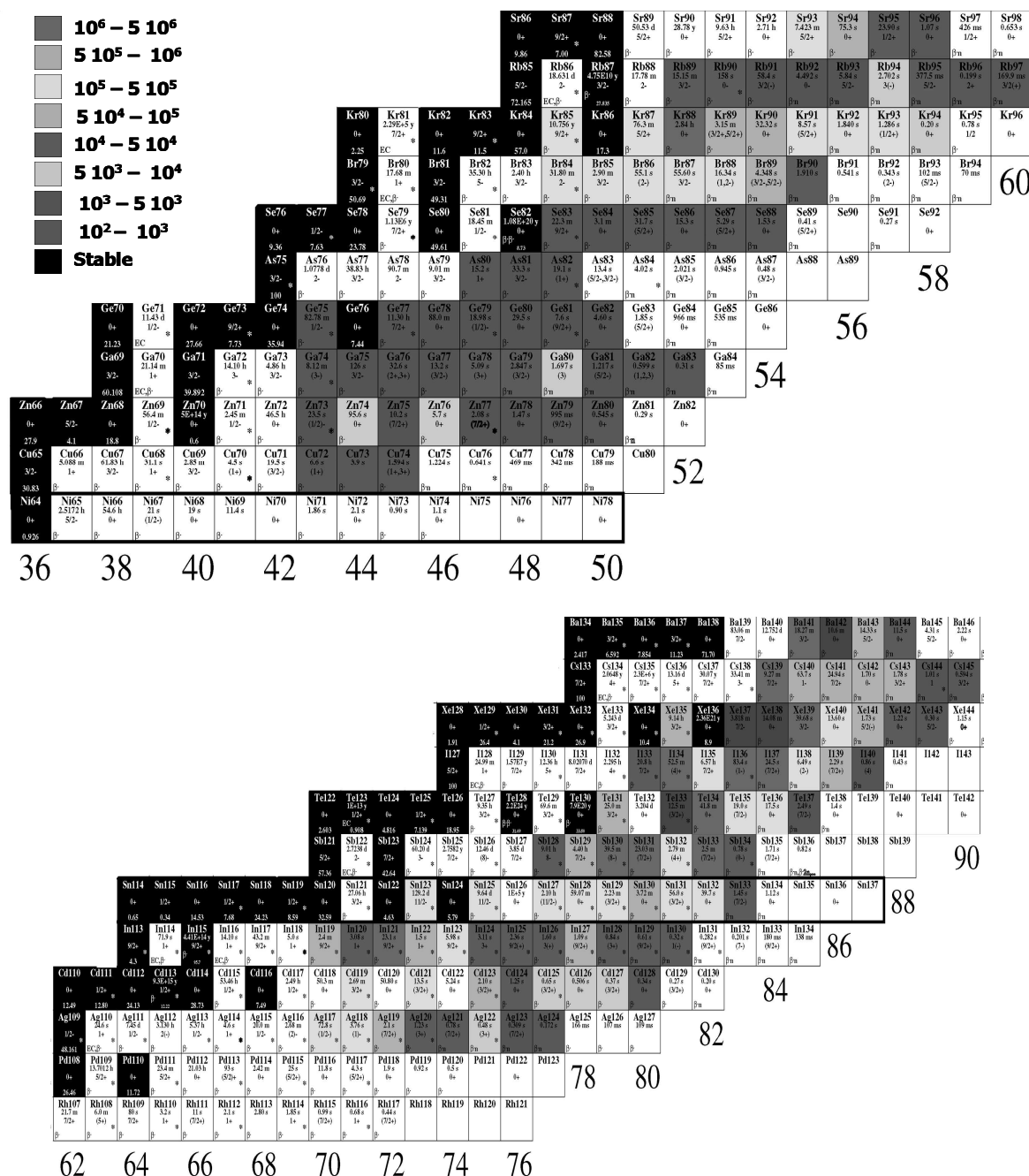


Figure I.7: Les productions obtenues à PARRNe2 par une source plasma MK5.

### I.3.3 La photofission

L'interaction d'un faisceau d'électrons d'énergie  $E_e$  avec des convertisseurs métalliques comme le tungstène génère un spectre continu des photons gammas dont l'émission angulaire est anisotrope [Ber 70]. Son maximum se situe au voisinage de l'axe d'incidence du faisceau d'électrons. Ainsi que le montre la figure I.8 [Ogan 02], l'énergie des gamma varie de zéro jusqu'à l'énergie des électrons incidents. Leur rendement augmente au

fur et à mesure que l'énergie des électrons augmente. Les photons produits d'énergie supérieure au seuil de fission de l'uranium 238 soit 6 MeV peuvent être utilisés pour induire sa fission. En effet, la section efficace d'absorption photonique totale de l'uranium 238 présente un pic de résonance dipolaire géante (GDR) entre 10 et 17 MeV donné par la figure I.8. Elle correspond à la somme de trois termes intéressants qui sont la section efficace de Photoneutron  $\sigma(\gamma, n)$  et  $\sigma(\gamma, 2n)$ , la section efficace de photofission  $\sigma(\gamma, f)$  [Cla 80]. Dans la gamme d'énergie de la résonance dipolaire, la contribution des neutrons de photoneutron à la fission de l'uranium est négligeable, elle est de 5% [SPI 02]. Par conséquent la section efficace d'absorption totale se réduit au terme de photofission, son maximum est de 0.16 barn à 15 MeV d'énergie.

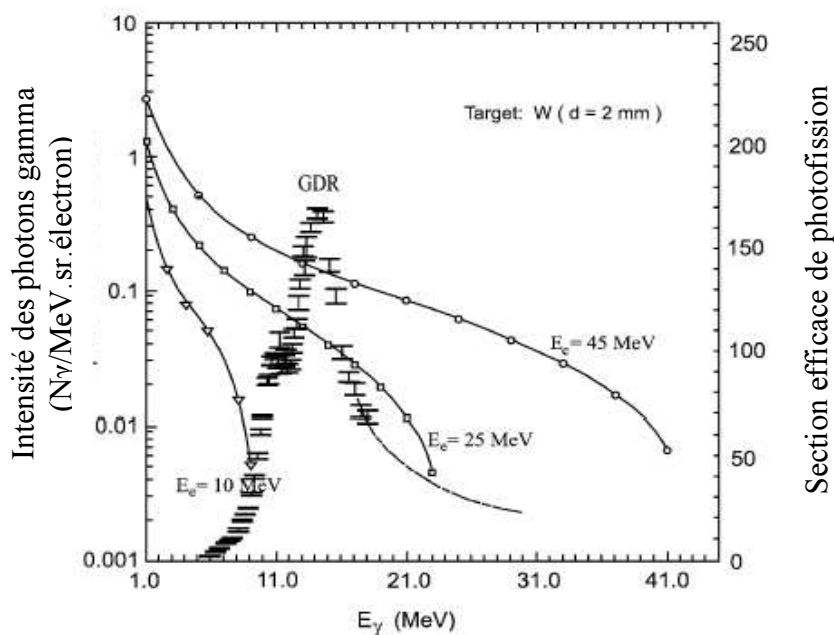


Figure I.8 : La ligne continue de la courbe représente l'intensité des photons  $\gamma$  en fonction de leur énergie pour les électrons incidents d'énergie 10 et 25, et 45 MeV. Les points expérimentaux représentent l'évolution de la section efficace de la photofission de l'uranium 238 en fonction de l'énergie des  $\gamma$ .

La convolution des courbes correspondantes à l'intensité des photons gammas et de la section efficace de photofission permet de déterminer le rendement (fission/électron) en fonction de l'énergie des électrons. Elle est présentée par la figure I.9 [Oga 02]. Cette courbe de convolution montre que le rendement de fission croît rapidement avec l'augmentation de l'énergie des électrons jusqu'à 30 MeV, puis il croît lentement jusqu'à atteindre la saturation à partir de 45 MeV. L'énergie du faisceau d'électrons optimale pour donner un rendement maximal est située entre 40 et 50 MeV.

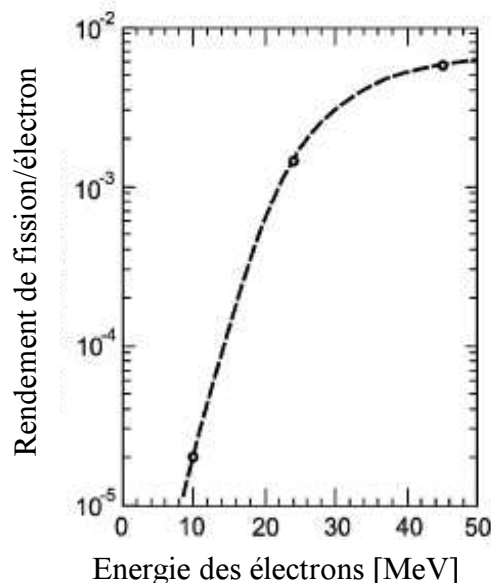


Figure I.9 : Rendement de fission par électron en fonction de l'énergie des électrons.

Les études menées par T. Diamond [Dia 99] et Yu.Ts Oganessian [Oga 02] ont montré que la photofission induite par des gammas de Bremsstrahlung issus de l'arrêt d'un faisceau d'électrons sur un convertisseur métallique est une alternative prometteuse pour la production d'atomes radioactifs riches en neutrons. En effet, du fait la disponibilité des faisceaux d'électrons intenses (30 MeV, 100 kW) on peut générer dans la cible d'uranium 238 jusqu'à  $3 \cdot 10^{13}$  fissions/s [Dia 99].

### **Etude expérimentale PARRNe 1 pour la production des atomes radioactifs par photofission**

Dans le but de vérifier la faisabilité de l'exploitation de la photo-fission comme mode de production de noyaux riches en neutrons, une expérience a été menée par l'IPN d'Orsay auprès de l'accélérateur d'électrons LIL (LEP Injector Linac) au CERN au moyen d'un dispositif transportable PARRNe 1 [Ibr 02]. Ce dispositif a été conçu pour mesurer en ligne le taux de production des gaz rares radioactifs produits par fission d'une cible d'uranium. La fission est induite par des photons de Bremsstrahlung obtenus par l'arrêt dans un convertisseur en tungstène d'un faisceau d'électrons de 50 MeV et d'intensité de quelques dizaines de nA fourni par cet accélérateur. La cible de fission est constituée de soixante sept pastilles d'UCx de diamètre de 14 mm. Sa densité et son épaisseur sont respectivement de 3.6 g/cm<sup>3</sup> et de 1.5 mm. Le chauffage de la cible d'UCx à 1800 °C permet aux gaz rares Xe et Kr radioactifs de diffuser le long d'un tube de transfert en inox. Ils sont ensuite collectés plus loin sur un doigt cryogénique où ils sont piégés par condensation. Les éléments relâchés par la cible autres que les gaz rares sont piégés à température ambiante à l'entrée du tube de transfert. Le doigt cryogénique est porté à 12 K au moyen d'un système de refroidissement utilisant la compression de l'hélium dans un circuit fermé (cryopompage). Les isotopes de Xe

et Kr piégés sont identifiés par spectroscopie gamma à l'aide du détecteur Ge placé juste en face de la chambre où se trouve le doigt froid. Pour minimiser le bruit de fond généré par les gammas de Bremsstrahlung, l'ensemble de détection est placé dans une zone assez éloignée de la zone d'irradiation. La salle de mesures et celle d'irradiation (située dans la ligne de l'accélérateur) sont séparées par une dalle en béton ayant une épaisseur de 2 mètres. Le tube qui relie la chambre où se trouve la cible à la chambre où se trouve le doigt froid avait une longueur de 8 mètres.

La pression résiduelle dans l'ensemble du dispositif expérimental ne doit pas dépasser  $10^{-4}$  mbar pour ne pas détériorer par oxydation la cible de fission portée à haute température et ne pas saturer le doigt cryogénique. Du côté de cible le pompage est assuré au moyen d'une pompe turbomoléculaire de 200 l/s. Quant au côté détection, le vide est assuré par la cryopompe.

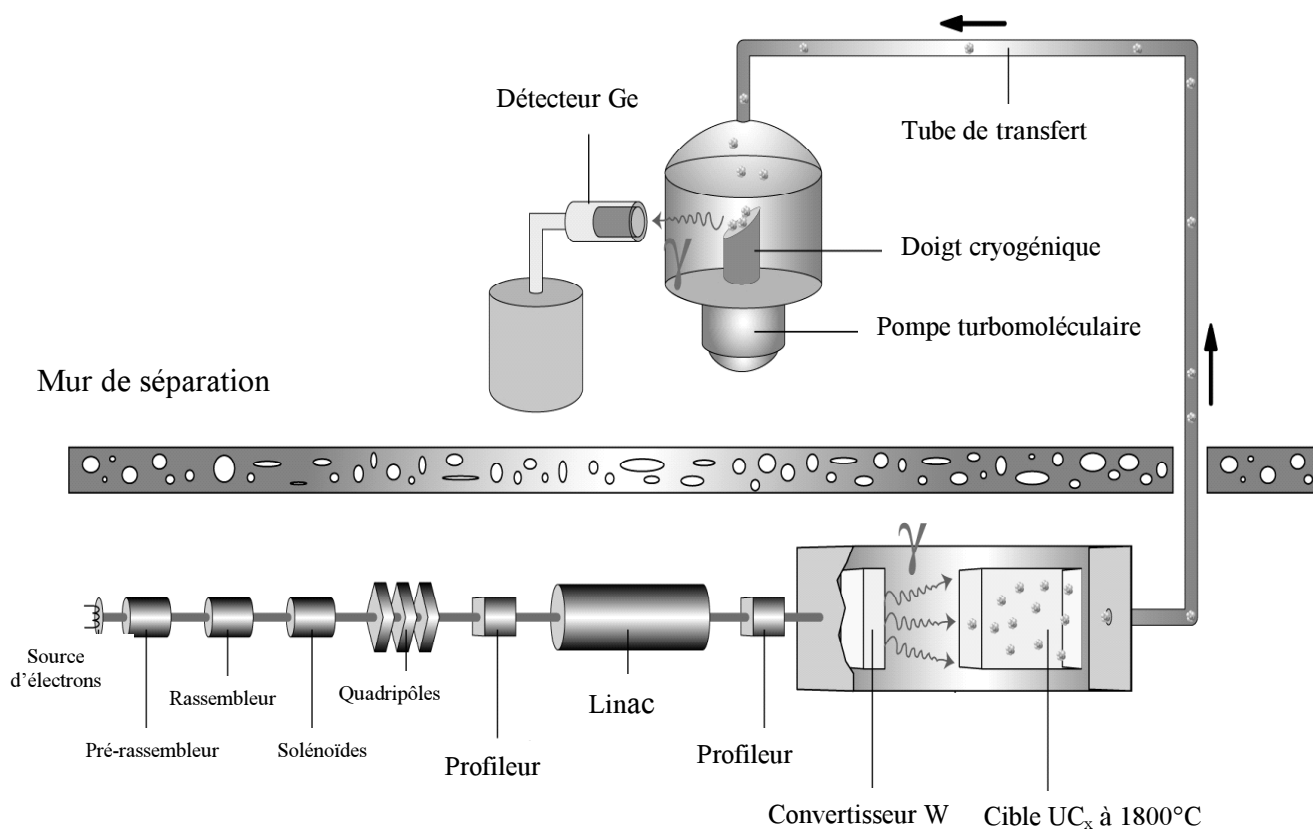


Figure I.10 : Dispositif expérimental du PARRNe 1 utilisé à l'accélérateur d'électrons LIL au CERN.

## Les résultats de mesures de PARRNe 1

Cette expérience a été faite avec plusieurs configurations géométriques afin d'analyser l'influence de la dispersion angulaire des photons gamma sur le taux de production en Xe et Kr. Les distances choisies entre le convertisseur et la cible sont de 8 cm et 4 cm. Elles sont des valeurs typiques d'une installation expérimentale. La troisième configuration a consisté à une irradiation directe (sans convertisseur) de la cible d' $UC_x$  par le faisceau d'électrons. Les productions de Xe et Kr radioactifs corrigées par l'efficacité de détection et normalisées par l'intensité du faisceau d'électrons sont présentées dans les figures I.11 et I.12.

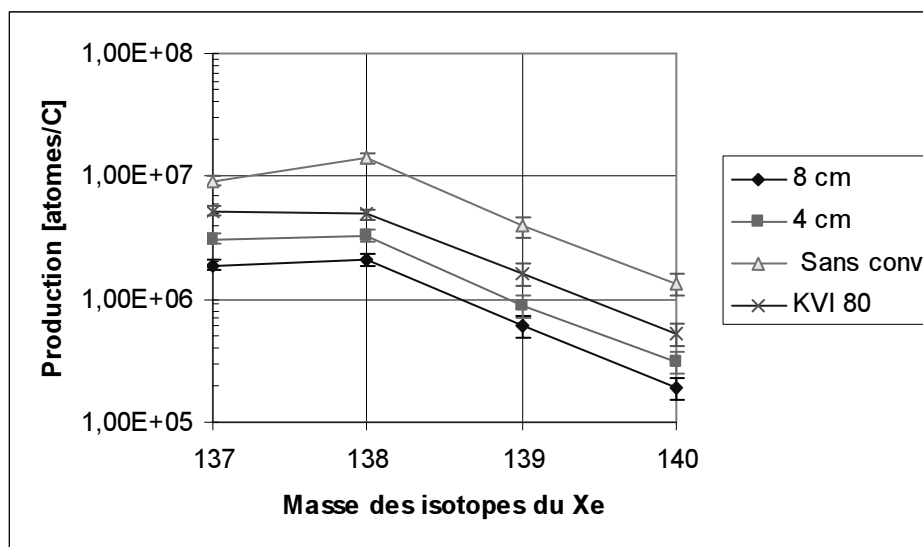


Figure I.11 : Production des isotopes du Xe obtenue au LIL pour les positions 8 et 4 cm avec un faisceau d'électrons pulsé de 50 MeV d'énergie et d'intensité à 50 nA. La position sans convertisseur est faite avec un faisceau de 10 nA.



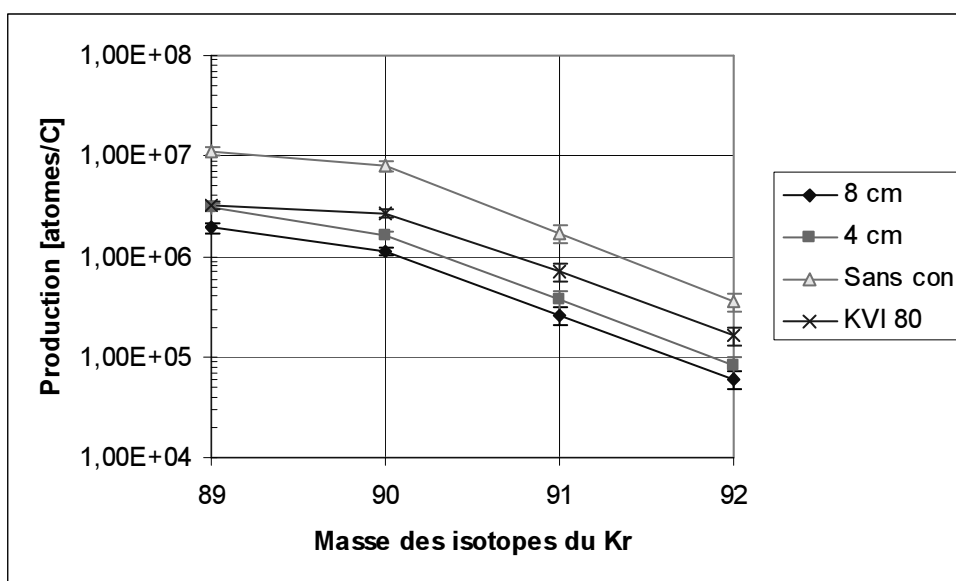


Figure I.12 : Production des isotopes du Kr obtenue à LIL pour les positions 8 et 4 cm avec un faisceau d'électrons de 50 MeV et de 50 nA. La position sans convertisseur est faite à 10 nA.

Pour faire la comparaison des productions des électrons et des deutons, nous nous sommes référés aux meilleurs résultats obtenus au cyclotron KVI auprès d'AGOR avec des deutons de 80 MeV. Les productions de cette expérience avec une même épaisseur de cible sont présentées sur les figures I.11 et I.12. La comparaison de ces résultats montre les points suivants :

- Un gain de 1.5 a été obtenu en rapprochant la distance convertisseur cible de 8 à 4 cm. Cette observation est due à une distribution angulaire pointue des photons.
- Par irradiation directe de la cible, un gain d'un facteur 4 est obtenu par rapport à l'utilisation d'un convertisseur à 4 cm. Cependant le convertisseur pourrait présenter l'intérêt de limiter le dépôt d'énergie dans le cas des faisceaux intenses.
- le fait que les électrons interagissent directement avec la cible, permet de multiplier le gain en production d'un facteur 2.5 par rapport à celui obtenu avec le faisceau de deutons de 80 MeV d'énergie. De plus, l'utilisation des deutons de 80 MeV permet d'avoir un gain en production d'un facteur 10 par rapport à celui obtenu avec des deutons de 26 MeV fourni par le Tandem d'Orsay. Par conséquent, l'utilisation d'un faisceau d'électrons d'intensité de 5  $\mu$ A permet d'envisager un gain en production d'environ un facteur 100 par rapport à l'installation actuelle du Tandem qui ne peut fournir qu'une intensité de deutons de 1  $\mu$ A. C'est dans ce contexte que l'IPN d'Orsay a étudié le projet ALTO.



Les estimations de production de quelques éléments d'intérêt comme le Zn et le Sn sont données par les figures I.13 et I.14. Elles sont obtenues à partir de la connaissance du nombre de fissions ( $7 \cdot 10^{10}$  fission/s) corrigé par l'efficacité de relâchement de la cible et l'efficacité d'ionisation du Zn et Sn par la source d'ions MK5.

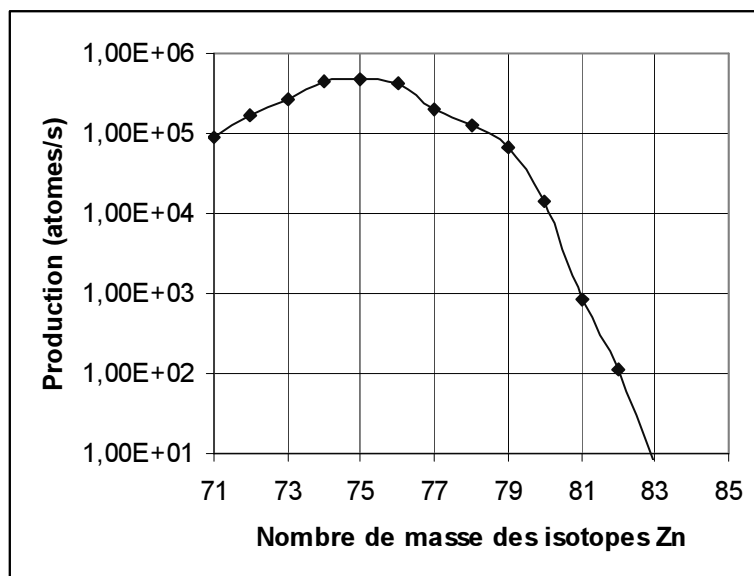


Figure I.13 : Production d'ALTO attendue des isotopes du Zn à la sortie d'une source d'ions MK5.

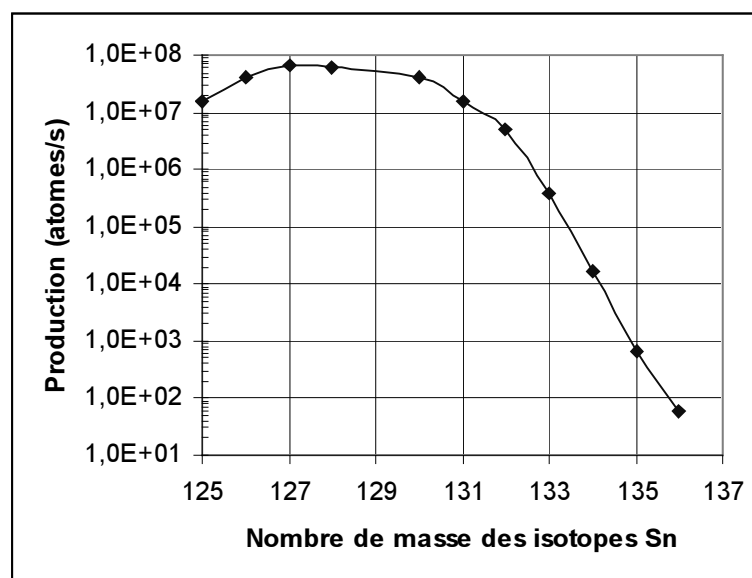


Figure I.14: Production d'ALTO attendue des isotopes du Sn avec une source d'ions MK5.

Pour expliquer grossièrement ce gain en production, il faut estimer le nombre de fissions. Il est déterminé à partir de la connaissance des sections efficaces de fission et de l'intensité des photons gammas présentées par la figure I.9. Son expression est la suivante :

$$N_f = \frac{1}{M_U S_b} \int_{xy\theta\phi} N_\gamma(\theta) \overline{\sigma(\theta)} \frac{(1 - \exp(-\mu z(x, y, \theta, \phi)))}{\mu} dx dy \sin(\theta) d\theta d\phi \quad (I.12)$$

Avec :

$$\overline{\sigma(\theta)} = \frac{1}{N_\gamma(\theta)} \frac{\int_{E_\gamma} N_\gamma(E_\gamma, \theta) \sigma(E_\gamma) dE_\gamma}{\int N_\gamma(E_\gamma, \theta) dE_\gamma} \quad (I.13)$$

$\overline{\sigma(\theta)}$  : La section efficace moyenne de photofission dans un angle  $\theta$ .

$\mu$  : Coefficient d'atténuation massique pour une cible d'UC<sub>x</sub>, il est de l'ordre de 0.061 cm<sup>2</sup>/g [Oga 02].

$Z(x, y, \theta, \phi)$  : Parcours massique (g/cm<sup>2</sup>) du gamma émis à l'intérieur de la cible.

$S_b$  : Section du faisceau d'électrons.

$M_U$  : Masse des cibles d'uranium 238.

$N_\gamma(\theta)$  : Nombre de photons émis dans un angle  $\theta$ .

$N_\gamma(E_\gamma, \theta)$  : Distribution angulaire et énergétique du faisceau gamma produit.

$\sigma(E_\gamma)$  : Section efficace de la photofission donnée par Diamond [Diam 99]

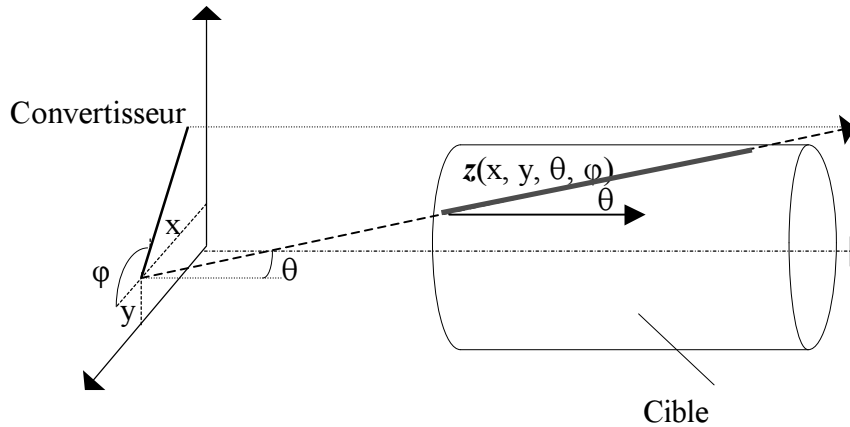


Figure I.15 : Ensemble convertisseur-cible utilisé pour estimer le nombre de fission  $N_f$ .

Depuis le code FICEL (Fission Induite dans une Cible par des Electrons) de Mirea et al. [Mir 03] et Bajeat et al. [Baj 03] on déduit le nombre de fissions  $N_f$  induites par les gammas pour les différentes positions convertisseur-cible. Il est donné dans le tableau I.2. Les deux premiers résultats du tableau sont destinés aux distances convertisseur-cible de 8 cm et de 4 cm, le troisième résultat est pour une irradiation directe de la cible UC<sub>x</sub> par le faisceau d'électrons.

Distance convertisseur-cible cm	Nombre de fissions/s/ $\mu$ A
8	$9,5 \cdot 10^7$
4	$2 \cdot 10^8$
Sans convertisseur	$9 \cdot 10^8$

Tableau I.2 : Nombre de fissions en fonction de la position convertisseur-cible.

Pour induire le maximum de fission dans la cible par des photons gamma, il est nécessaire d'approcher autant que possible le convertisseur de la cible ou d'irradier directement celle-ci par le faisceau d'électrons. Pour trouver le gain en production présenté au dessus il suffit de faire le rapport correspondant à chaque configuration.

### I.3.4 Etude de l'épaisseur d'une cible d'UCx pour l'exploitation de la photofission dans la séparation en ligne

Les gammas ont une absorption dans la matière différente de celle des neutrons. Afin de déterminer les conditions optimales de production de faisceaux, il convient de s'assurer que la photofission demeure un mode exploitable avec une cible plus épaisse. A l'aide du code FICEL nous déterminons le nombre de fissions (normalisé par l'intensité du faisceau d'électrons de  $10 \mu$ A) en fonction de la longueur de la cible. Il est donné par la figure I.16.

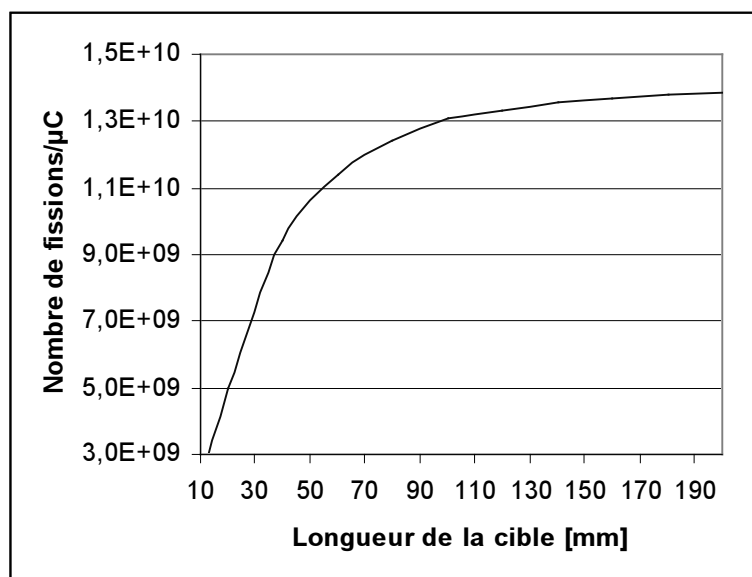


Figure I.16 : Nombre de fissions induites par les photons  $\gamma$  en fonction de la longueur de la cible UCx de densité de  $3,6 \text{ g/cm}^3$ .

La figure I.16 montre que le nombre de fissions augmente avec la longueur de la cible de fission jusqu'à atteindre une limite à partir d'une longueur d'environ 150 mm. Cette limitation

est due à la distribution angulaire des gammas. En conclusion une longueur de cible de 150 mm est suffisante pour nos expériences en ligne de PARRNe 2.

En ce qui concerne le nombre de fissions issues de neutrons rapides en fonction de la longueur de la cible, on utilise le code de calcul FICNeR (Fission Induite dans une Cible par des Neutrons Rapides) développé par Mirea et al. [Mir 01]. Il est basé sur le modèle de Serber [Ser 47] pour déterminer la distribution angulaire et énergétique des neutrons. Le modèle de Serber considère l'hypothèse que la cinétique d'interaction prépondérante du faisceau de deutons d'énergie de 26 MeV avec le convertisseur est le stripping. Cette hypothèse est vérifiée lorsque le faisceau de deutons a une énergie cinétique largement supérieure celle de l'énergie liaison de deutons qui est de 2.2 MeV. Comme notre cas vérifie cette hypothèse, le résultat du stripping est la production d'un flux de neutrons dans la direction incidente du faisceau de deutons, d'une ouverture conique et d'énergie de l'ordre de la moitié de celle des deutons.

La courbe de la figure I.17 représente l'évolution du nombre de fissions en fonction de la longueur de la cible d'UCx pour un faisceau de deutons de 26 MeV et d'intensité de 1  $\mu\text{A}$ . La figure montre que la longueur de la cible permettant un nombre optimal de fissions en PARRNe 2 est également d'environ 150 mm.

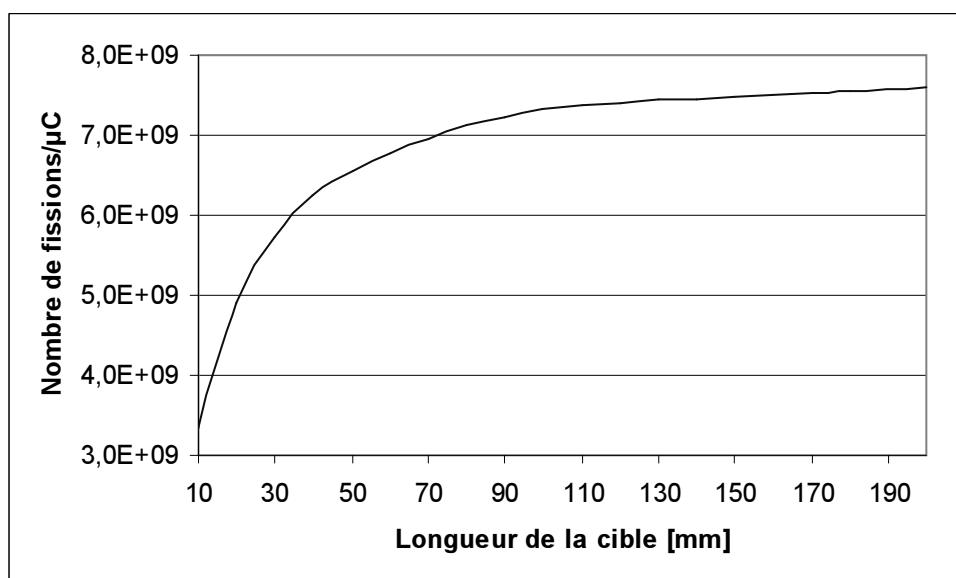


Figure I.17: Nombre de Fissions induites par les deutons en fonction de la longueur de la cible de fission constituée par des pastilles d'UC<sub>x</sub> de densité 3.6 g/cm<sup>3</sup>.

La comparaison des longueurs optimales de cibles déduites à partir des figures I.16 et I.17 montre que les deux cibles utilisées dans les modes de production : photofission et fission rapide peuvent être identiques.

## **Conclusion**

Cette étude nous a permis de montrer que la photofission est une option comparable à la fission induite par des neutrons rapides pour produire des noyaux riches en neutrons, malgré que la section efficace de photofission soit 10 fois plus petite que celle des neutrons rapides. Cette perte de section efficace est compensée par l'efficacité de conversion électrons/photons qui est beaucoup plus importante que celle de conversion deutons/neutrons.

Les accélérateurs d'électrons ont un coût plus faible, avec minimisation des problèmes de radioprotection, ce qui rend cette option séduisante et nous a conduit à étudier l'implantation d'un accélérateur d'électrons de 50 MeV et d'intensité de 10  $\mu$ A auprès du Tandem de l'IPN d'Orsay. Cette installation va nous permettre de produire, avec l'installation PARRNe 2, des faisceaux d'ions riches en neutrons d'intensité beaucoup plus élevée que ceux obtenus jusqu'à présent par les deutons (gain moyen de 125 autour des bosses de fission). En particulier les faisceaux d'intérêts comme notamment le  $^{132}\text{Sn}$  qui sera à  $10^7$  ions/s comparé à  $3 \cdot 10^7$  ions/s à ISOLDE et le  $^{78}\text{Zn}$  à  $2.5 \cdot 10^5$  ions/s comparé à  $4 \cdot 10^5$  ions/s à ISOLDE [Ess 03].

## Chapitre. II. Etude et fabrication des pastilles de carbure d'uranium

### *II.1 Problématique liée au développement de cibles pour la production d'ions radioactifs séparés en ligne*

L'intensité des faisceaux d'ions radioactifs produits par séparation en ligne (ISOL) est donnée par l'expression suivante :

$$I = I_p \cdot \sigma \cdot N_C \cdot \varepsilon_r \cdot \varepsilon_{ion} \cdot \varepsilon_{tr} \quad (\text{II.1})$$

$I_p$  est l'intensité du faisceau de particules incidentes issues de l'accélérateur,  $\sigma$  la section efficace de production des noyaux d'intérêts (fission rapide ou la photo-fission dans notre installation PARRNe),  $N_C$  est l'épaisseur de la cible exprimée en nombre de noyaux d'uranium par unité de surface,  $\varepsilon_r$  est l'efficacité de relâchement d'un élément donné de la cible vers la source d'ions,  $\varepsilon_{ion}$  est l'efficacité d'ionisation de cet élément,  $\varepsilon_{tr}$  est l'efficacité de transport du séparateur.

D'après l'équation II.1, l'optimisation de la production des faisceaux d'ions radioactifs riches en neutrons s'articule essentiellement autour de trois axes : le mode de production, l'optimisation du relâchement et le mode d'ionisation. Le premier concerne le choix du type de particule pour induire la fission de la cible ainsi que son intensité et son énergie. Le deuxième implique la réalisation des cibles de densité élevée permettant la diffusion la plus rapide possible des produits de fission. Le troisième axe concerne le choix de la source d'ions.

Les noyaux d'intérêt formés lors de la fission de l'uranium sont piégés dans la cible. Ils ont généralement une durée de vie très courte. Pour avoir des informations sur ces éléments, il est nécessaire de les extraire de la cible le plus rapidement possible. Etant donnée que la production des atomes dans la cible est proportionnelle au parcours des neutrons, l'utilisation d'une cible épaisse permet d'obtenir une production importante. La production et

la décroissance radioactive des éléments sont deux processus en compétition. Il est nécessaire de les optimiser afin d'aboutir à des cibles épaisses qui relâchent avec une grande efficacité les produits de fission.

Le relâchement des produits de fission d'une cible solide fait intervenir trois processus : la diffusion granulaire, inter-granulaire, et la désorption à la surface du solide. Dans notre cas où la température de chauffage est au-delà de 1700 °C, la diffusion inter-granulaire est négligeable [Car 78]. Par conséquent nous ne considérerons que les mécanismes de relâchement prépondérant : la diffusion granulaire ou la désorption à la surface.

Premièrement, nous allons aborder les aspects théoriques de la diffusion qui nous permettent de choisir la structure de cible puis présenter les développements menés à l'Institut de Physique Nucléaire pour la fabrication de cible à base d'uranium.

## **II.2 La diffusion dans une cible de production**

De nombreux travaux ont été consacrés à l'étude des phénomènes de diffusion des produits de fission. Dans le cadre de la production des faisceaux radioactifs, divers travaux ont été publiés afin de comprendre les phénomènes de diffusion des produits de fission dans une cible [Car 78, Fuj 81, Kir 92].

Du point de vue microscopique, la diffusion dans un solide cristallin est la réponse du solide due à une perturbation extérieure. Elle se traduit sur le réseau cristallin par des déplacements des atomes de leurs positions d'équilibre pour occuper des positions lacunaires et interstitielles locales du réseau. En suite elle se répartit entièrement dans tout le volume du cristal, si son énergie est suffisante. Son traitement est complexe, nous proposons dans ce qui suit une étude macroscopique plus simple où la diffusion se fait dans un solide polycristallin.

Les études se sont penchées particulièrement sur le calcul pour déterminer l'efficacité de relâchement  $\varepsilon_{rel}$  d'un élément chimique donné. Cette efficacité regroupe des informations qui permettent de calculer la fraction d'atomes échappés de la cible, le temps moyen de relâchement etc. De telles données peuvent permettre de déduire les sections efficaces de production pour des cibles épaisses. L'efficacité de relâchement d'un élément radioactif de période  $T_{1/2} = \ln 2 / \lambda$  est reliée à la fonction de retard  $p(t)$  par l'équation suivante :

$$\varepsilon_{rel}(T_{1/2}) = \int_0^{\infty} p(t) \exp(-\lambda t) dt \quad (\text{II.2})$$

le produit  $p(t)dt$  définit la probabilité pour que les nucléides implantés à  $t = 0$  soient relâchés entre  $t$  et  $t+dt$ , le second terme exponentiel donne la probabilité de survie des nucléides à

l'instant  $t$ . Nous proposons la méthode de calcul de l'efficacité de relâchement à partir de l'équation de diffusion granulaire.

## II.2.1 Diffusion granulaire

La diffusion d'un isotope dans un milieu solide est régie par les deux lois de Fick [Fick 85]. La première loi concerne un régime permanent. Elle décrit l'évolution de la densité vectorielle de courant ( $\vec{j}$ ) d'un isotope en fonction du gradient de sa concentration  $C$  le long des pores du grain.

$$\vec{j} = -D\vec{\nabla}C \quad (\text{II.3})$$

Le coefficient de proportionnalité  $D$  ( $\text{cm}^2\text{s}^{-1}$ ) est appelé coefficient de diffusion, il dépend de la température de la cible et de l'activité énergétique  $E_a$  du processus de diffusion. Son expression est donnée par la relation d'Arrhenius.

$$D = D_0 e^{-\frac{E_a}{kT}} \quad (\text{II.4})$$

Où  $D_0$  est le facteur de fréquence, exprimé en  $\text{cm}^2\text{s}^{-1}$ . Il est une constante qui ne dépend que du couple atome adsorbé-solide adsorbant. Sa valeur varie de 0.05 à 5  $\text{cm}^2/\text{s}$  [Bey 77].

La deuxième loi de Fick dite de conservation a été établie pour un régime transitoire, elle montre que toute variation temporelle de la concentration génère un transport des isotopes.

$$\partial_t C = -\vec{\nabla} \cdot \vec{j} = D(\vec{\nabla} \cdot \vec{\nabla})C \quad (\text{II.5})$$

Pour tenir compte de la production  $q$  des isotopes produits par fission et de la perte par décroissance radioactive de l'isotope caractérisée par sa constante de décroissance radioactive  $\lambda$ , nous ajoutons deux termes à l'équation II.5.

$$\partial_t C = -\vec{\nabla} \cdot \vec{j} = D(\vec{\nabla} \cdot \vec{\nabla})C - \lambda C + q \quad (\text{II.6})$$

L'équation (II.6) a été résolue analytiquement par la méthode de séparation des variables pour des cibles sous forme de poudre, de feuilles et de fibre, en tenant compte des différentes conditions initiales et conditions aux limites et en supposant que les diffusés sont produits d'une façon uniforme à  $t = 0$  [Rud 81, Fuj 81].

La proportion des isotopes restants dans la cible est :

$$f_\mu^m(t) = \int_0^t p_\mu^m(t) dt \quad (\text{II.7})$$



Avec

$$p_{\mu}^m(t) = \frac{2m\mu_0}{\pi^2} \sum_{n=0}^{\infty} e^{-\mu_n^m t} \quad (\text{II.8})$$

Appelée fonction de retard, son expression est donnée par la référence [Rud 87].

Les valeurs de  $m$  et  $\mu_n^m$  sont fonction de la forme des grains. Dans le cas d'une diffusion dans une feuille d'épaisseur  $r$  ou un grain sphérique de rayon  $r$ , elles ont respectivement les expressions suivantes :

$$\begin{aligned} \mu_n^1 &= \mu_0 (2n+1)^2 \\ \mu_n^3 &= \mu_0 (n+1)^2 \\ \mu_0 &= \frac{\pi^2 D}{r^2} \end{aligned} \quad (\text{II.9})$$

Pour déduire l'efficacité de relâchement, il suffit de remplacer (II.6) dans (II.7) pour chaque géométrie de la cible. D'où on déduit pour une cible à grains sphérique son efficacité de relâchement :

$$\varepsilon_{rel}^s = \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(n+1)^2 + \lambda / \mu_0} = \frac{3(\sqrt{\lambda \pi^2 / \mu_0} \coth \sqrt{\lambda \pi^2 / \mu_0} - 1)}{\lambda \pi^2 / \mu_0} \quad (\text{II.10})$$

De la même façon on détermine l'efficacité de relâchement dans une feuille :

$$\varepsilon_{rel}^f = \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)^2 + \lambda / \mu_0} = \frac{\tanh \sqrt{\lambda \pi^2 / 4 \mu_0}}{\sqrt{\lambda \pi^2 / 4 \mu_0}} \quad (\text{II.11})$$

Les expressions de l'efficacité de relâchement montrent que la diffusion d'un isotope dans la matrice granulaire de la cible dépend du  $\mu_0$ . Elle dépend donc des cinq paramètres suivants :

- Température  $T$  de la cible
- L'énergie d'activation  $E_a$
- Facteur de fréquence  $D_0$
- Forme et taille du grain

Elle dépend également de la constante de décroissance radioactive  $\lambda$  du radio-isotope. Cette efficacité de relâchement est une fonction décroissante de  $\lambda$ . L'optimisation de cible revient à obtenir la valeur la plus élevée possible de  $\mu_0$ .

En comparant les efficacités de diffusion données par la figure II.1 pour une cible à grain sphérique, une sous forme de fibre et une de feuille de dimensions analogues, on peut déduire que l'efficacité de diffusion dans un grain sphérique est meilleure. Pour cela lors de la fabrication des cibles d'uranium, il est plus judicieux de choisir une structure en poudres pressées et frittées. Cependant la comparaison menée n'est pas suffisante, il faudrait tenir compte d'autre paramètre important comme notamment la désorption qui sera abordée par la suite.

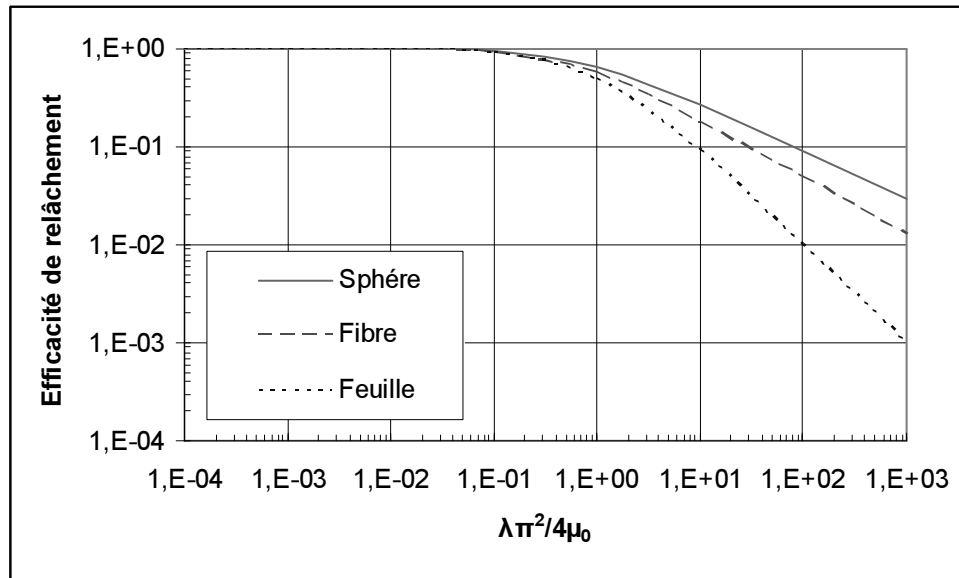


Figure II.1: Comparaison de l'efficacité de diffusion dans un grain sphérique, une fibre et une feuille de dimensions infinies en fonction de  $4\mu_0/\lambda\pi^2$ .

## II.2.2 Désorption

FRENKEL a établi le formalisme qui permet de caractériser la cinétique de désorption, i.e. de quantifier le temps de séjour d'un atome entrant en contact avec une paroi. Ce temps de séjour est donné par [Kir 86] :

$$\tau = \tau_0 e^{\frac{\Delta H_d}{k_b T}} \quad (\text{II.12})$$

Avec  $\tau_0$  de l'ordre de  $10^{-13}$  s,  $T$  la température de la cible et  $k_b$  la constante de Boltzmann.  $\Delta H_d$  est l'enthalpie de désorption à la surface, elle ne dépend que du couple atome adsorbé/adsorbant. Cette enthalpie est estimée dans des tables semi-empiriques de Roßbach et Eichler pour les couples atome adsorbé-solide adsorbant [Roß 84, Eic 85], elle est typiquement de 1 eV pour les gaz rares et les alcalins et peut atteindre 6 eV pour des éléments condensables du tableau périodique (Pd, As, Ge) [Kir 86].

L'équation II.12 montre que le temps de desorption ne dépend que du couple atome adsorbé-solide adsorbant et de la température du solide. Par conséquent le choix d'un composé de la cible d'uranium ainsi que d'un creuset de la cible et d'un tube de transfert ayant une faible inertie chimique vis-à-vis des noyaux radioactifs est très important pour minimiser le temps de collage. Quant à la température de chauffage de la cible, son élévation est un facteur bénéfique sur l'effusion des noyaux radioactifs.

## ***II.3 Les cibles d'uranium***

### **II.3.1 Paramètres recherchés pour le développement d'une cible d'uranium**

Comme mentionné en début de ce chapitre, le relâchement des noyaux de la cible est principalement contrôlé par deux mécanismes : la diffusion et la désorption. Pour assurer la meilleure efficacité de ces mécanismes, la cible doit être chauffée à une température élevée. Un tel chauffage peut par conséquent provoquer des artefacts de la cible. Ces artefacts peuvent être d'origine physique par le frittage de la cible dans son container, ou chimique par la réactivité avec les matériaux environnants.

Le comportement des produits de fission dans les domaines de température élevés diffère selon leurs propriétés thermodynamiques et physico-chimiques. Leur séparation de la cible peut se faire selon la différence de volatilité, ainsi que sur la différence de réactivité vis-à-vis des agents oxydants introduits pour certain afin de former des molécules facilement transportable à la source d'ions [Car 78, Hof 84, Rou 73]. Il en résulte que la vapeur des éléments d'intérêt ainsi que les agents oxydants introduits pour former des molécules devaient avoir une caractéristique importante est la comptabilité chimique avec les composés de la cible d'uranium. La formation de composés chimique ou d'alliage à la surface de la cible peut affecter considérablement son pouvoir de relâchement. La cible d'uranium doit donc être inerte chimiquement vis-à-vis des éléments radioactifs et des agents oxydants.

Afin de répondre à ces exigences la cible d'uranium doit avoir une bonne tenue à l'irradiation. En ce qui concerne la stabilité chimique, les éléments qui la composent ne doivent pas se décomposer même à haute température. Dans le but de permettre une longue exploitation en ligne ainsi que le bon fonctionnement de la source d'ions, sa tension de vapeur faible doit être inférieure à  $10^{-3}$  mbar aux températures d'exploitation de la cible (de 1800 à 2500 °C). Il nécessaire que la cible soit inerte chimiquement et ayant une structure et une géométrie favorisant le processus de relâchement [Bjø 86].

### II.3.2 Justification de l'utilisation d'un composé réfractaire

Pour porter une cible d'uranium à haute température il n'y a que deux possibilités : la fabrication des cibles d'uranium métallique à l'état liquide ou sous forme des composés réfractaires. La cible d'uranium liquide a l'avantage d'avoir une densité élevée et un coefficient de diffusion de 100 à 1000 fois plus important que les solides métalliques, mais son inconvénient majeur est que les parcours des produits de fissions sont quatre fois plus longs que ceux d'une cible solide [Lau 00]. A l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay nous avons réussi à réaliser une cible épaisse d'uranium liquide. Son exploitation en ligne PARRNe a montré qu'elle devrait être intéressante pour une forte production des noyaux de période de quelques dizaines de secondes [Lau 00].

Afin d'obtenir une cible de production permettant d'obtenir les éléments les plus riches en neutrons, le choix s'est porté sur des composés réfractaires d'uranium qui présentent une structure favorable à un relâchement rapide.

### II.3.3 Caractéristiques des composés réfractaires de l'uranium

Parmi tous les composés binaires réfractaires d'uranium que nous avons vus, il ne faut choisir celui le mieux adapté à répondre aux paramètres recherchés dans § II.3.1. Pour guider ce choix, il est nécessaire de présenter les propriétés physiques et chimiques des composés réfractaires d'uranium.

Ils sont essentiellement constitués par une synthèse de l'uranium avec l'un des éléments suivants, le bore, le carbone, l'azote, l'oxygène, le soufre, et finalement les siliciures [Pas 61]. En comparant leur température de fusion ainsi que leur efficacité de relâchement, il apparaît que seuls les carbures d'uranium possèdent les qualités requises pour être utilisés comme cible de production de noyaux radioactifs riches en neutron [Rav 87-b]. Nous présenterons plus de détail de l'analyse de chaque espèce.

Parmi tous les composés des siliciures d'uranium, seul le  $\text{USi}_2$  est le plus réfractaire, sa température de fusion est à 1700 °C, tandis que les autres fondent à une température relativement inférieure [Pas 61], ceci lui confère une limite de chauffage. Les borures d'uranium présentent une température de fusion élevée, mais ils ne possèdent pas la structure d'éponge (poreuse) pour un relâchement rapide des produits de fission [Pas 61].

Les dioxydes d'uranium et les nitrures d'uranium ont une température de fusion au delà de 2500 °C. Ils sont très intéressants à première vue, mais ils présentent un inconvénient majeur qui est une pression de vapeur élevée [Pas 61, Pas 67, Mar 67]. Cette dernière engendre des pertes partielles élevées, induisant une contamination de l'environnement de la cible (le séparateur et son système de pompage) ainsi qu'un mauvais fonctionnement de la source d'ions [Mar 67]. De plus leurs durées de vie sont limitées en ligne à cause de leurs évaporations rapides.

Nous verrons par la suite les raisons de comptabilité de carbure d'uranium avec la température de fonctionnement et l'environnement.

### **II.3.4 Propriétés de cible de carbure d'uranium utilisée à l'IPN d'Orsay**

Les cibles utilisées sont constituées par des grains de carbure d'uranium de diamètre quelques dizaines de microns [Car 79]. Le diagramme de phase du carbure d'uranium montre un large domaine monophasé qui s'étale entre les compositions chimiques  $UC_1$  et  $UC_2$  dans l'intervalle de température [1500, 2500] [Che 01, Pat 62]. Les températures de fusion du monocarbure et du dicarbure d'uranium sont respectivement 2525, et 2480 °C [Che 01]. Un domaine de solution solide entre ces compositions est formé, ayant une température de fusion de 2450 °C [Car 79]. La température de fusion élevée de ces carbures d'uranium et leur faible tension de vapeur aux températures typiques de chauffage en ligne ( $8.10^{-6}$  mbar à 2000 °C) leur procurent une bonne stabilité.

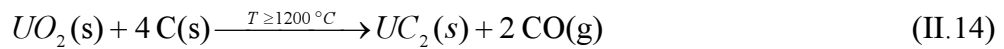
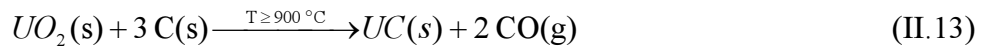
A haute température les carbures d'uranium sont chimiquement très corrosifs. Ils interagissent violemment avec un four en métal réfractaire (Ta, Mo ou W etc. [Car 79, Rav 75]). Il convient donc de palier à ce problème par l'utilisation d'un container en graphite afin de séparer les cibles de leur four et d'opérer dans un très bon vide. Les gaz résiduels oxydants comme notamment l'oxygène et le chlore peuvent aussi modifier les propriétés de la cible.

## **II.4 Technique expérimentale de fabrication**

Cette technique de fabrication a été développée par le groupe ISOLDE du CERN. Elle conduit à former une structure poreuse réfractaire de carbure d'uranium constituée par UC et  $UC_2$ .

### **II.4.1 Procédé de fabrication**

Les cibles sont des pastilles de 14 mm de diamètre et d'environ 1mm d'épaisseur. Son épaisseur est choisie pour assurer une bonne tenue mécanique. Pour former des pastilles d'uranium, le mélange poudreux d' $UO_2$  et de graphite est mis sous une compression axiale de 11 tonnes/cm<sup>2</sup> dans un moule en dural afin de rapprocher les grains les uns des autres. Ensuite on effectue un cycle de chauffage continu de ces pastilles dans un creuset de graphite. L'obtention de carbures d'uranium sous forme de grains est réalisée à chaud par la réduction carburante de dioxyde d'uranium  $UO_2$  suivants les réactions chimiques suivantes [Acc 61].



La réaction de carburation s'amorce à partir de 900 °C et à 1600 °C sous le vide. La cinétique de la réaction (II.15) est la plus rapide, cependant l'existence d'un excès du graphite favorise la réaction de l'uranium libre formé selon les réactions chimiques suivantes :



Dans un milieu excédentaire en graphite, on produit essentiellement du dicarbure d'uranium car le monocarbure d'uranium est instable à une température supérieure à 1200 °C.

Le cycle de chauffage comporte trois opérations qui sont :

- **Un chauffage progressif jusqu'à 900 °C**

Cette opération permet de dégazer les éléments volatils (eau, hydrogène, oxygène,...) que peut contenir le mélange et les composants du système de chauffage.

- **Un chauffage de 900 °C à 1600 °C**

Dans cet intervalle de température on observe une augmentation de pression due à la formation du monoxyde de carbone. Ce dernier est stocké en permanence avec tous les produits de dégazage pendant la mise sous vide. Un contrôle de pression est nécessaire pour limiter le dégazage qui peut induire des réactions chimiques avec la cible d'uranium.

- **Un chauffage de 1600 à 2000 °C**

C'est une opération de densification et de cristallisation de carbure d'uranium. Elle a aussi pour but de dégazer d'avantage le four et son environnement.

Le temps de chauffage de chaque opération est défini par une pression seuil de  $5 \cdot 10^{-5}$  mbar qu'il ne faut pas dépasser.

Les pastilles de carbure d'uranium obtenues sont pyrophoriques, c'est-à-dire qu'elles peuvent prendre feu à l'air. Leur manipulation se fait donc sous un flux continu de gaz inerte (ex. d'argon) pour éviter la réaction d'oxydation très exothermique avec l'oxygène de l'air.

## II.4.2 Appareillage de chauffage

Le système de chauffage est représenté d'une manière schématique dans la figure II.2. Il se compose d'une enceinte à vide dans laquelle est installée un four en graphite. Les pastilles sont placées dans un container en graphite, l'ensemble est mis à l'intérieur du four. Le chauffage du four est réalisé par effet de joule à l'aide d'une alimentation qui peut fournir une puissance de 3 à 4 kW. Cette puissance est suffisante pour atteindre une température de chauffage du four à 2200°C. Afin d'éviter un chauffage trop important de l'enceinte sous l'effet des rayonnement émis par le four et son ensemble, nous avons utilisé une circulation par un serpentin à circulation d'eau. Le pompage de l'enceinte est fait par une pompe à palette et une pompe à diffusion d'huile ayant une vitesse de pompage de  $710^4$  l/mn. La limite de vide atteinte par cet ensemble est de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-5}$  mbar.

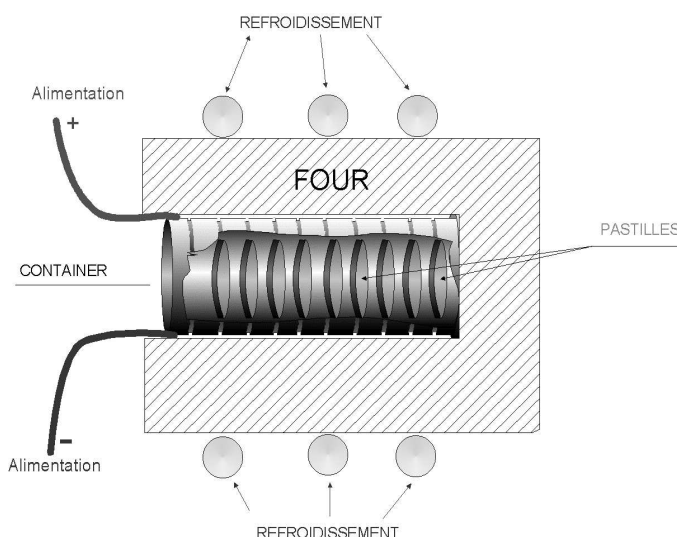


Figure II.2 : Schéma du four de carburation.

Pour réaliser la résistance de four on a doté un tube cylindrique creux en graphite de longueur de 12.5 cm et d'épaisseur de 1.5 mm de dix séries de stries (trois fentes de 0.5 mm d'épaisseur à 120°). Ces stries permettent d'avoir une résistance de 80 mΩ à 2000 °C [Lau 00]. L'homogénéité thermique de chauffage est assurée par la réalisation d'un usinage adapté des stries le long du four. Ce four peut contenir jusqu'à 67 pastilles.

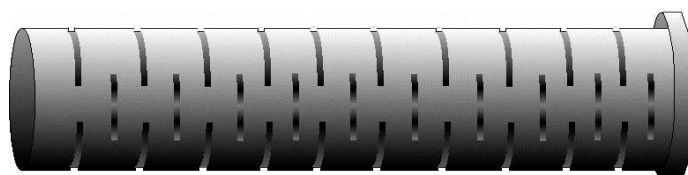


Figure II.3 : Schéma de la résistance en graphite.

### II.4.3 Préparation des pastilles

Pour la préparation des pastilles de carbure d'uranium, on utilise un mélange constitué d'une poudre de graphite et une poudre d'oxyde d'uranium appauvri. En vue de transformer tout l'oxyde d'uranium en carbure d'uranium, et de garder une structure poreuse (éponge), il est nécessaire de satisfaire la relation déduite à partir de la réaction bilan de carburation :

$$\text{Masse d'UO}_2/\text{Masse C} \leq 6.42$$

En mélangeant 11.93 g d'UO<sub>2</sub> et 3.12 g de carbone, ce qui correspond à un rapport de masse de 3.81, nous fabriquons 21 pastilles de (UO<sub>2</sub>+C) de masse moyenne 0.7 g et de diamètre 14 mm.

Nous effectuons des essais systématiques pour la caractérisation des fours utilisés. Ils consistent à déterminer leur température de chauffage en fonction de la puissance délivrée par l'alimentation de chauffage. La mesure de température est effectuée par un thermocouple W/W-Re mis au milieu du four. La courbe correspondante à l'étalonnage du four est donnée par la figure II.5. Elle montre qu'une puissance de 3.2 kW est suffisante pour atteindre une température de 2000 °C.

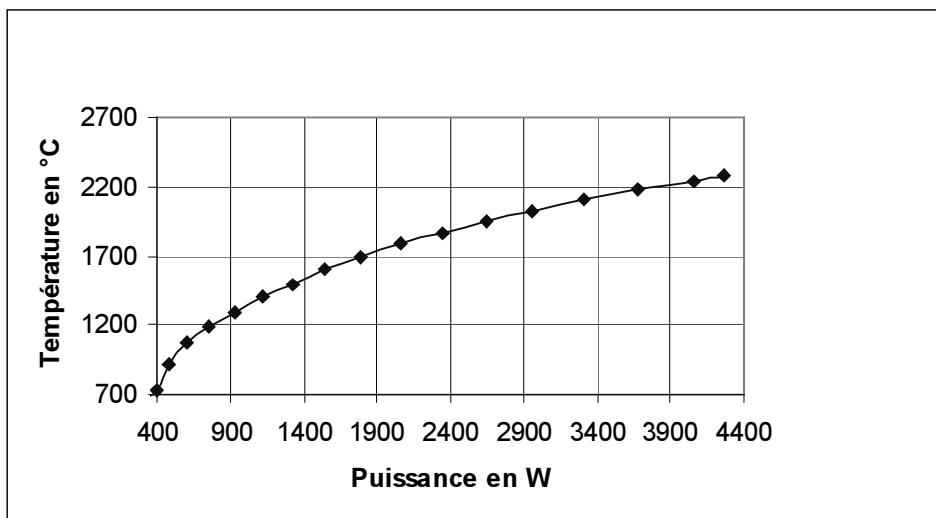


Figure II.4: Courbe d'étalonnage du four de carburation.



## ***II.5 Analyse des pastilles d'UCx***

A haute température de chauffage, la stabilité de la structure poreuse d'une cible de carbure d'uranium ainsi que sa stabilité chimique jouent un rôle important dans le processus de relâchement et de vieillissement des cibles. Elles sont actuellement mal connues, ce qui ne nous permet pas de connaître la gamme de température optimale d'exploration. Dans le cadre de la fabrication de cible d'uranium, il est aussi intéressant de contrôler la distribution transverse de l'uranium dans la matrice de graphite, afin de s'assurer que l'uranium est uniformément distribué dans la cible.

Afin de poursuivre le développement de cibles de fission notamment dans le cadre du programme EURISOL, l'étude de la stabilité des cibles est nécessaire. C'est pour quoi nous avons entrepris une telle étude en faisant varier la température des échantillons analysés. Les échantillons fabriqués ont été portés à différentes températures puis analysés par diffraction X et par microscopie électronique.

### **II.5.1 Analyse cristallographique des pastilles**

Cette analyse permet de déterminer les compositions chimiques de la cible de carbure d'uranium ainsi que leurs structures cristallines. Il existe plusieurs méthodes pour étudier la géométrie cristalline (diffraction X, diffraction neutronique...) nous avons appliqué dans notre cas la diffraction X sur un échantillon poudreux. La diffraction des rayons X est une méthode d'analyse de phases non destructive. Elle permet d'identifier les phases cristallisées présentes dans les matériaux par comparaison avec des fichiers de références réactualisés annuellement et comportant actuellement les données de 69500 composés (fichier J.C.P.D.S)..

Le principe réside dans l'étude de la diffraction par le cristal des rayons X, photons de longueur d'onde de l'ordre de l'angström. La longueur d'onde est inférieure à la distance intermoléculaire. Dans cette méthode, les rayons X sont monochromatiques et l'échantillon est mis en rotation pour trouver la position des plans de Bragg. L'utilisation de poudres ou échantillon polycristallins à grains fins et sans orientation préférentielle permet d'accéder à toutes les valeurs de  $\theta$  (angle de réflexion du faisceau de rayons X) donné par l'équation de Bragg :  $2d \sin \theta_n = n\lambda$ , où  $d$  est la distance entre deux plans atomiques et  $n$  est l'ordre de la réflexion. On obtient un diffractogramme de poudre comme celui présenté par la figure II.5. Elle représente l'intensité diffractée en fonction de l'angle  $2\theta$  par rapport à la direction du faisceau incident. L'enregistrement des spectres de diffraction est réalisé par un microphotomètre qui mesure le noircissement de l'impact des rayons X diffractés sur une pellicule. Dans de bonnes conditions la position des molécules est à  $5 \cdot 10^{-3} \text{ Å}$  de la surface de la cible. Il s'agit donc d'une analyse en surface.

Dans notre cas le faisceau est délivré par un tube à rayons X fonctionnant sous une tension de 40 kV et une intensité de 20 mA. Le faisceau monochromatique a une longueur d'onde  $\lambda = 1.542 \text{ \AA}$ . Cette longueur d'onde est caractéristique de la raie d'émission  $K_\alpha$  du cuivre sélectionné par une fente. L'énergie des rayons X est négligeable devant le seuil de photofission de l'uranium.

Sur la figure II.5 on montre trois spectres typiques de diffraction X obtenus pour une série d'échantillons constituée de trois pastilles d'UCx portées à 1900 °C. La raison de prendre trois pastilles à la même température est de vérifier la fiabilité des résultats d'analyse. D'après la figure II.5 on constate une superposition presque parfaite des pics correspondants aux pastilles notées UCX#1 et UCX#2. Leur analyse montre que ces échantillons sont constitués essentiellement par du dicarbure d'uranium.

Cependant pour le spectre de la pastille UCX#3 on remarque un décalage de certains pics vers la gauche par rapport aux pics des spectres de UCX#1 et UCX#2. L'identification des pics d'UCX#3 situés à la position 26°, 29° et 47°, montre qu'il s'agit d'oxydes d'uranium. Les détails d'analyse sont donnés dans le tableau II.1.

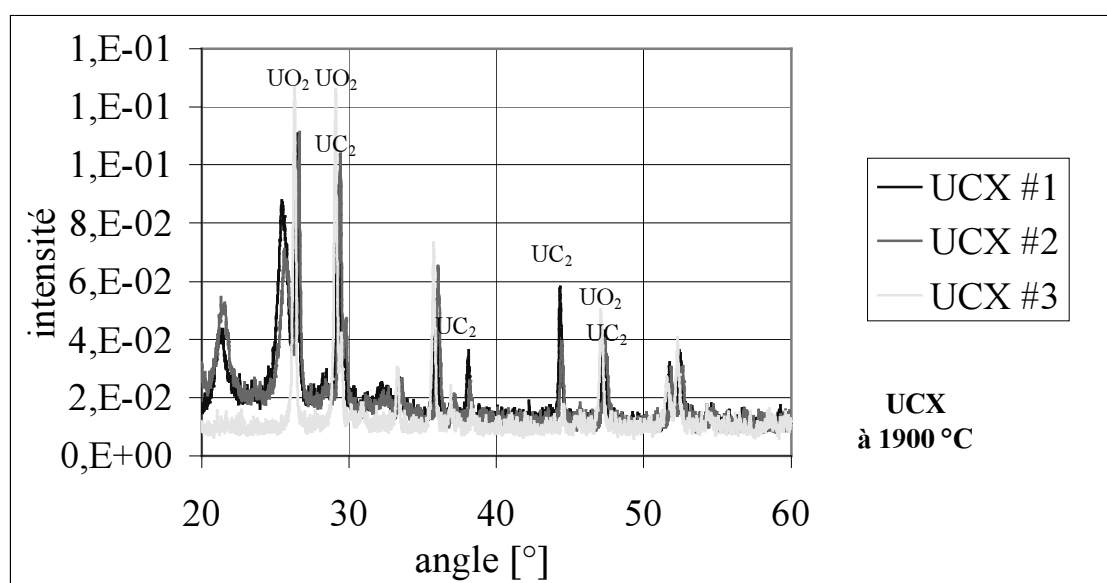


Figure II.5 : Spectre de diffraction X obtenu après chauffage de trois pastilles d'UCx à 1900 °C.

Après carburation des pastilles, nous prenons trois séries d'échantillons dont chacune est constituée de trois pastilles chauffées respectivement à 1600, 1900 et 2000 °C. Ces pastilles sont analysées par diffraction X afin de déterminer leur composition chimique. A partir des résultats obtenus nous pouvons observer l'évolution des compositions chimiques de la cible en fonction de la température. De cette façon une étude comparative des

caractéristiques des pastilles peut être effectuée. L'analyse des spectres aux différentes séries d'échantillon nous a permis d'identifier différents composés pour chaque température de chauffage, (cf. tab. II.1).

	Série d'échantillons 1	Série d'échantillons 2	Série d'échantillons 3
T(°C)	1600	1900	2000
Constitution	UC, UC <sub>2</sub> , UO <sub>2</sub> , UO <sub>3</sub> , U <sub>4</sub> O <sub>9</sub> Graphite	UC <sub>2</sub> , UO <sub>3</sub> , U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> U <sub>4</sub> O <sub>9</sub> + UO <sub>2</sub> seulement sur la troisième pastille Graphite	UC <sub>2</sub> , UO <sub>3</sub> , U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> U <sub>2</sub> O <sub>5</sub> + UO <sub>2</sub> seulement sur la troisième pastille Graphite

*Tableau II.1 : Composition chimique des pastilles en fonction de leur température de chauffage.*

Bien que nous ayons réduit au mieux le temps entre l'analyse de chacune des trois pastilles et le contact avec l'air (transport sous argon), les spectres révèlent la présence de dioxyde d'uranium dans le troisième échantillon des séries portées à 1900 et 2000 °C. Ceci montre que l'oxydation du carbure d'uranium est extrêmement rapide à l'air. Au-delà de 1900 °C le pic caractéristique d'UC a disparu, ceci confirme les prédictions thermodynamiques d'instabilité du monocarbure d'uranium à haute température [Acc 61]. Bien que UC ait un point de fusion plus élevé que UC<sub>2</sub>, dans un milieu riche en carbone, il se transforme bien avant le point de fusion en UC<sub>2</sub>. Par conséquent on s'attend à ce que la température limite de tenue des cible UC<sub>x</sub> ne dépasse pas le point de fusion de UC<sub>2</sub>.

## II.5.2 Analyse des pastilles par le microscope à balayage

L'analyse des pastilles de carbure d'uranium par microscopie électronique à balayage permet de déterminer trois caractéristiques importantes qui sont :

- La forme des grains
- La granulométrie (distribution du spectre des tailles des grains)
- La distribution transverse de l'uranium dans la matrice de graphite

Comme déjà évoqué, ces paramètres jouent un rôle important sur l'efficacité de relâchement de la cible. Cette analyse permet de contrôler la qualité de la fabrication des pastilles UC<sub>x</sub> et leur reproductibilité, ainsi que la caractérisation des poudres de dioxyde d'uranium et de graphite utilisées.

Le travail effectué a consisté à analyser des pastilles fabriquées mais non chauffées (mélange poudreux de dioxyde d'uranium appauvri et de graphite) et des pastilles de carbure d'uranium portées à 1600, 1800, 2000, 2200 °C pour une durée de chauffage d'environ 15 h.

### II.5.3 Principe de la méthode

L'interaction d'un faisceau monocinétique d'électrons sur une cible épaisse se traduit par une émission d'un spectre de Rx dont l'énergie et l'intensité dépendent des éléments contenus dans une épaisseur de la cible (le MEB est une technique d'analyse en appliquée à l'étude de couches minces).

Les énergies des Rx émis sont déterminées à l'aide d'un détecteur Si(Li), ensuite elles sont comparées à un fichier d'émission des Rx d'énergies préalablement connues afin d'identifier l'élément responsable à cette émission. Ceci se fait automatiquement par un logiciel spécifique. Ainsi par cette technique nous pouvons déterminer la composition chimique de notre cible en éléments majeurs même ceux en trace. Elle nous permettra de faire un profil de concentration de ces éléments comme celui présenté par la Figure II.6. En plus, cette analyse permet de déterminer la taille des grains en se basant sur les électrons de rétrodiffusion ou secondaires selon la résolution spatiale voulue.

### II.5.4 Caractéristique technique du MEB utilisée

Afin de pouvoir réaliser les mesures des dimensions de grain par microscopie électronique, nous avons utilisé l'appareil de l'Institut d'Electronique Fondamental d'Orsay. Le détecteur de rayons X est un Si(Li) refroidi par l'azote liquide. Il permet de mesurer l'énergie des rayons X émis par l'échantillon bombardé par les électrons avec une résolution en énergie de 138 eV. Le temps mort de ce détecteur est compris entre 20 et 30% avec un traitement analogique des spectres.

Le faisceau d'électron utilisé est focalisé en un diamètre de 50 nm à 100 nm avec un courant de quelque dizaines de nA.

### Comparaison de la composition chimique des cibles avant et après carburation

Les spectres d'analyse par fluorescence X obtenus, comme celui présenté par la figure II.6, nous ont permis de montrer que les pastilles avant la carburation sont bien constituées par du carbone, de l'oxygène et l'uranium. Aucune contamination par d'autres éléments n'a été remarquée. Ainsi que le montre la figure II.7, après carburation on peut noter la disparition totale du pic caractéristique de l'oxygène. Cela justifie que la quantité d'oxygène est inférieure à la limite de détection du microscope électronique (environ de 5 ppm), plus précisément seuil de détection du (Si(Li)). Donc la quantité d'oxygène dans la cible de carbure d'uranium est négligeable. Sa présence ne peut être que sous forme de trace.

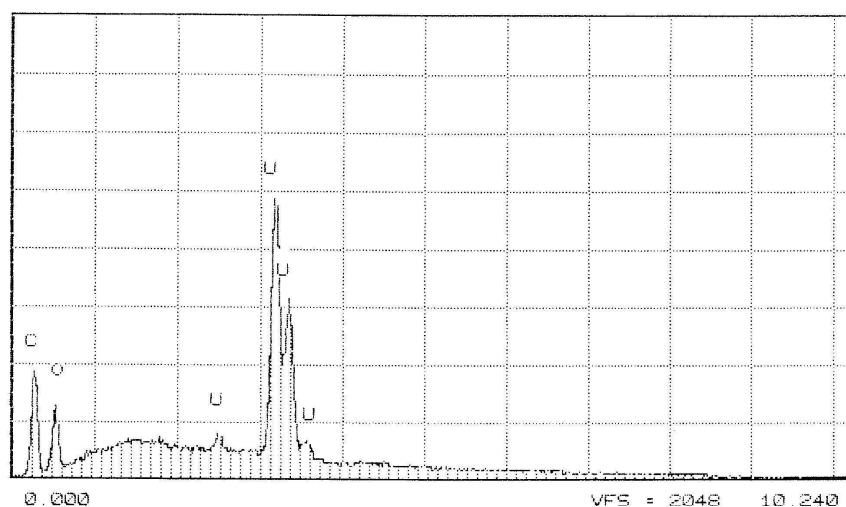


Figure II.6 : Spectre par fluorescence X sur une pastille avant carburation. On peut noter que le pic le plus intense est celui d'uranium car sa masse est plus importante que le graphite et l'oxygène. Les rapports massiques  $m_U/m_C$  et  $m_U/m_O \approx$  sont respectivement de l'ordre de 4 et 2.5.

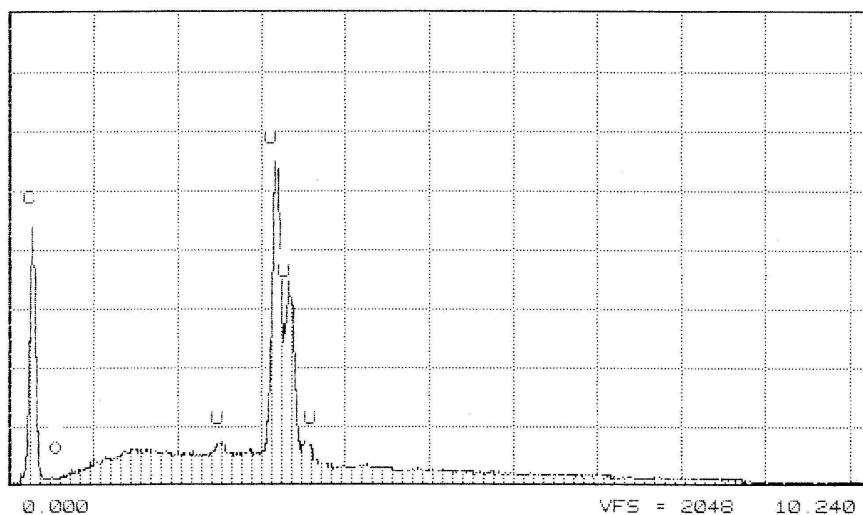


Figure II.7 : Spectre par fluorescence X obtenu après la carburation de la cible portée à 2000 °C.

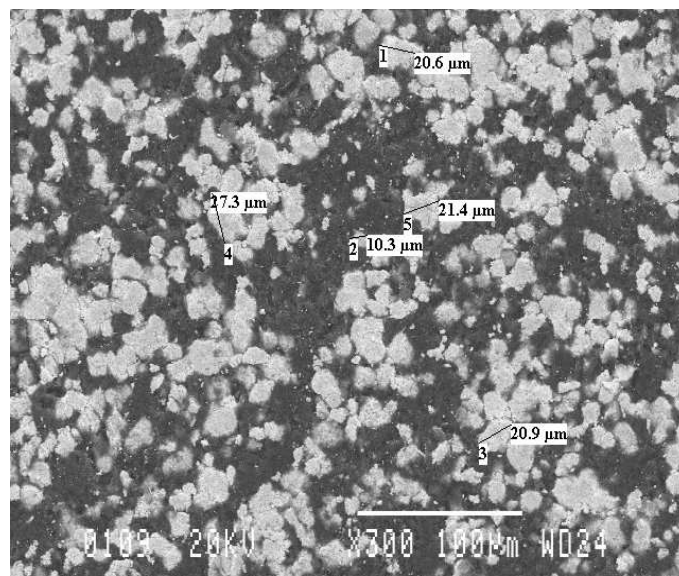


Figure II.8 : Spectre de taille de la poudre de ( $\text{UO}_2 + \text{C}$ ).

D'après la figure II.8, les grains de dioxyde d'uranium et du graphite ont respectivement une taille moyenne  $\sim 20$  et  $40 \mu\text{m}$ .

#### Evolution des tailles de grains en fonction de la température de chauffage

Dans les figures II.9 et II.10, II.11 et II.12, on donne les figures obtenues par le microscope à balayage à différentes températures. L'identification par fluorescence X de la zone noire observée sur les images montre que celle-ci est constituée par du graphite tandis que la zone blanche est constituée par du carbure d'uranium. Il est important de noter que la technique de fabrication de cible de carbure d'uranium d'ISOLDE, adaptée à l'IPN d'Orsay, nous a permis de réaliser une structure poreuse de cible dont l'uranium est bien reparti dans la matrice du graphite. La taille moyenne des grains d' $\text{UC}_2$  entre  $2000$  et  $2200^\circ\text{C}$  est presque inchangée. Elle est de l'ordre de  $28 \mu\text{m}$ . La faible concentration de graphite libre à une température supérieure à  $2000^\circ\text{C}$  confirme bien que le rapport massique entre l'uranium et le graphite est optimum. Même s'il est possible de réduire ce rapport, le graphite en excès à l'avantage d'assurer un effet de blocage d'accroissement de grain de  $\text{UC}_2$  et d'augmenter la stabilité de la cible à haute température. Autour de  $2000^\circ\text{C}$ , la cible de carbure d'uranium n'est pas vraiment granuleuse, en effet comme le montre la figure II.12, le volume d' $\text{UC}_2$  est une agglomération de grains de quelques microns. Si on considère que la structure de la cible est granuleuse avec une taille moyenne de grain de  $20 \mu\text{m}$ , alors grâce à la connaissance du temps de relâchement du Kr :  $T_R = 8.3 \text{ s}$  mesuré [Rou 02], nous pouvons déduire un ordre de grandeur de son coefficient de diffusion. Il est de  $3 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$ . Cette valeur est comparable avec celle donnée par [Pas 67].

L'absence d'oxydes d'uranium à l'intérieur des pastilles justifie que leur présence en surface dans les pastilles analysées par diffraction X est due à l'oxydation en contact de l'air.



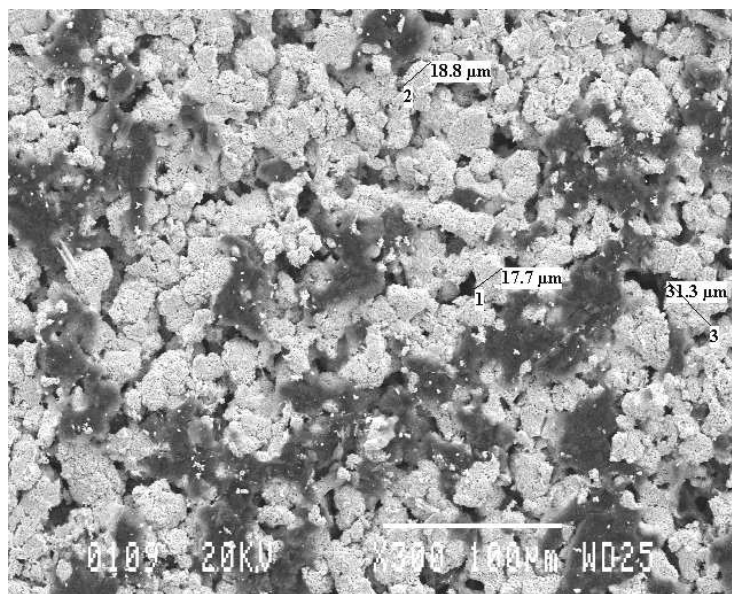


Figure II.9 : Structure de la cible de carbure d'uranium chauffée à 1600 °C. Le grandissement de cette figure est à 300. L'identification par diffraction X de la zone noire montre qu'elle est du graphite tandis que la zone blanche est du UC<sub>x</sub>. La taille moyenne des grains est de 22 μm.

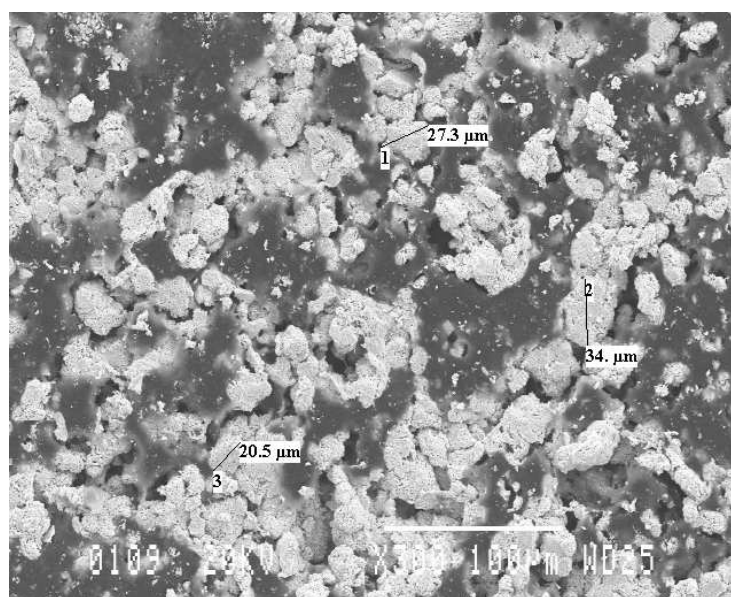


Figure II.10 : Structure d'une cible de carbure d'uranium chauffé à 1800 °C. La taille moyenne de grains d'UC<sub>x</sub> est de 27 μm.

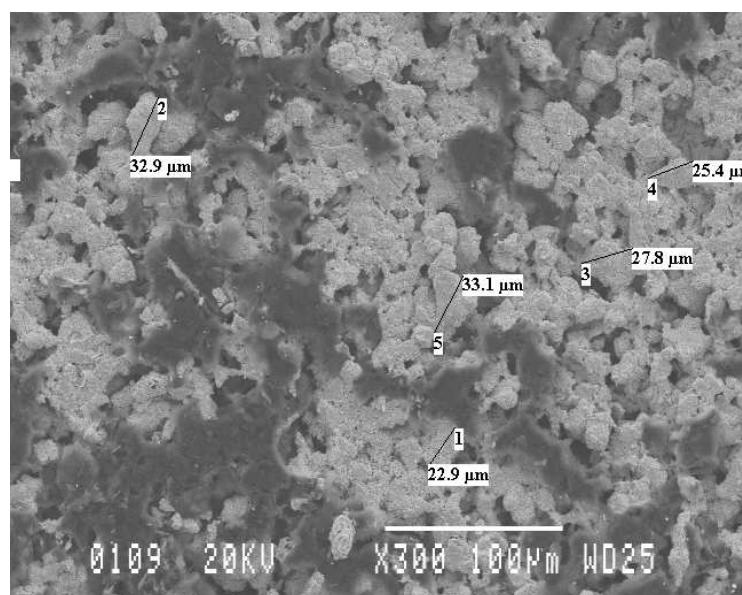


Figure II.11 : Structure d'une cible de carbure d'uranium chauffé à 2000 °C. La zone blanche est d' $UC_2$  de taille moyenne 28 μm.

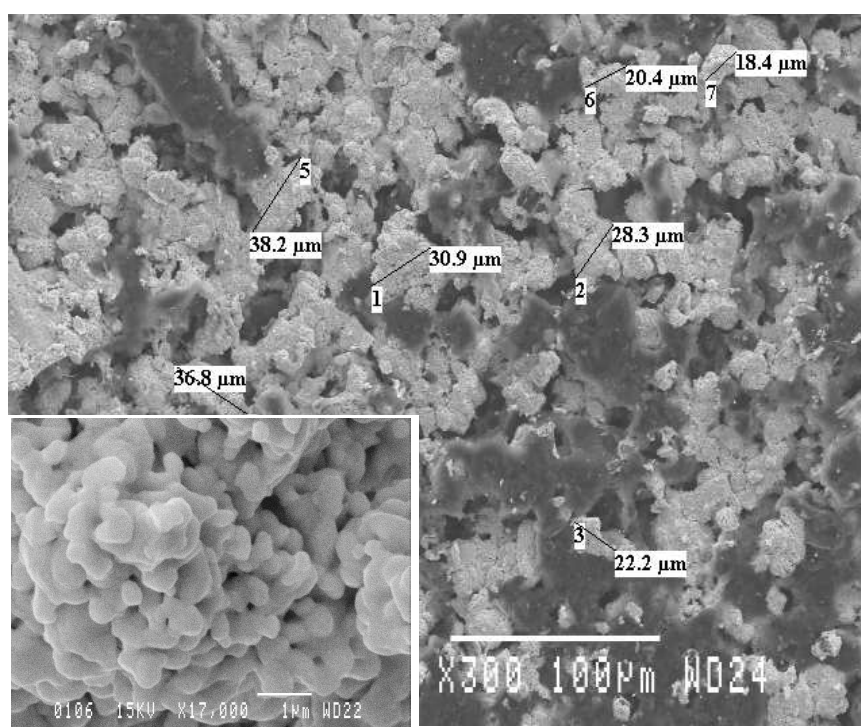


Figure II.12 : Structure d'une cible de carbure d'uranium chauffé à 2200 °C. La figure principale est obtenue avec un grandissement de 300. Elle montre que la taille moyenne d' $UC_2$  est de 28 μm. L'image secondaire représente le volume d' $UC_2$  observé avec un grandissement de  $1.7 \cdot 10^4$ . Le volume d' $UC_2$  est l'empilement de plusieurs grains de quelque micron.



## II.6 Conclusion

Les analyses réalisées par Diffraction X et MEB nous permettent de constater que la procédure de fabrication des carbures d'uranium est bonne. En effet les pastilles préparées ne présentent pas de trace visible d'impuretés. Ce qui confirme le bon choix des matériaux entrants en contact avec la cible (four, réflecteur...). Ces matériaux n'ont pas généré une contamination remarquable provenant des éléments de dégazage notamment l'oxygène, l'azote, le bore, le chlore. De ces analyses on peut dire qu'on peut travailler jusqu'à 2200 °C sans altération sensible. Quant au vieillissement de la cible, il faudra faire des chauffages de longues durées, essais prévus dans le cadre SPRAL 2. La faible évolution de la taille de grain entre 1600 et 2200 °C nous amène à penser que les grains de carbure d'uranium fabriqué sont en équilibre structural.

Les pastilles du carbure d'uranium constituées essentiellement d' $UC_2$  nous ont permis en ligne d'atteindre une température de chauffage optimale à 2200 °C. Grâce à ce haut chauffage, nous avons réussi même à observer les éléments de courte période comme notamment le  $^{99}Rb$  ( $T_{1/2} = 50$  ms) et le  $^{148}Cs$  ( $T_{1/2} = 158$ ms) riches en neutrons [Lau 03]. Ces éléments alcalins font l'objet du chapitre suivant.

La quantité d'uranium évaporé à la fin de la carburation est négligeable. La radioactivité des déchets gazeux rejetés par les pompes à vide est comparable à la radioactivité naturelle. Mais malgré cela, nous avons pris le maximum de précaution en stockant ces gaz.

## Chapitre. III. La production de noyaux radioactifs riches en neutrons

### III.1 Introduction

Les rendements de fission des fragments les plus riches en neutrons sont mal connus, que ce soit pour la fission induite par neutrons rapides ou pour celle induite par neutrons thermiques.

Dans le cadre du projet EURISOL, il est envisagé pour certains éléments, de produire des faisceaux d'isotopes relativement riches en neutrons, de période de l'ordre de la centaine de milliseconde. Il convient donc de déterminer la distribution des fragments de fission les plus riches en neutrons afin de pouvoir estimer au mieux les intensités avec lesquelles nous pourrions effectivement les produire.

Afin d'acquérir des données avec des neutrons rapides d'une dizaine de MeV, nous avons réalisé des séries de mesures auprès du Tandem 15 MV d'Orsay avec le séparateur PARRNe 2 (énergie moyenne des neutrons  $E_n = 10$  MeV pour des deutons de 26 MeV) et un système de détection adapté.

A l'heure actuelle nous pouvons envisager d'obtenir de telles données pour les alcalins Rb, Cs, et les métaux Ga, In. Considérant la distribution en masse des fragments de fission (cf. par exemple figure I.4), les séries isotopiques de Rb et de Cs se trouvent chacune sur une des deux bosses de la distribution. Par contre la série isotopique d'In se situe dans la vallée de cette distribution et celle de Ga en bordure de distribution, au voisinage de la fission suprasymétrique. Ainsi, les mesures que l'on va réaliser sur les isotopes : Rb, In et Cs, fourniront des informations relativement étendues sur la distribution des fragments de fission. En utilisant une source à ionisation de surface de type ISOLDE [Koe 01] on peut produire efficacement les faisceaux de ces éléments. De plus, une source à ionisation de surface présente l'avantage majeur d'être adapté à une exploitation sous forte irradiation, car elle fait intervenir un minimum de composant.

Nous présentons dans la première partie de ce chapitre les propriétés de cette source. La deuxième et la troisième parties de ce chapitre sont consacrées à l'exploitation en ligne de cette source auprès de PARRNe 2 qui a permis de mesurer les productions des isotopes de Rb, Cs et In et les temps de relâchement de deux de ces éléments (Rb, Cs). Ces temps de relâchements permettront d'estimer les pertes d'intensité auxquelles on doit s'attendre lorsque l'on va vouloir produire un faisceau d'isotopes de courte période.

Connaître les efficacités de relâchement et les productions après séparation en masse sur toute une série isotopique permet d'évaluer les rendements de fission relatifs des isotopes, lesquels rendements sont des données essentielles pour déterminer la méthode à utiliser pour produire des faisceaux intenses de noyaux radioactifs. Le travail présenté dans ce chapitre est une des contributions de l'IPN d'Orsay au projet EURISOL [EUR]. Il a été effectué en collaboration avec le Laboratori Nazionale di Legnaro (Italie), et l'Institut für Kernchemie de Mayence (Allemagne), et ISOLDE du CERN (Suisse) [Lau 03].

### **III.2 L'ionisation de surface**

Ce phénomène a été découvert par Langmuir et Kingdon en 1923 [Kin 23]. Lorsque les atomes à faible potentiel d'ionisation ( $E_i < 6$  eV), comme les alcalins, interagissent avec une surface métallique (appelée ioniseur) portée à haute température, ils sont réémis sous forme d'ions monochargés. Dans le cas d'un flux de Cs interagissant avec du tungstène porté à une température supérieure à 800 °C, le courant d'ions extraits dépend de la tension de vapeur  $P$ (mbar) de cet élément et de la température  $T$ (°C) de l'ioniseur. Son expression est donnée par l'équation suivante :

$$I_+ = \frac{0.367P}{\sqrt{T+273}} \text{ (A/cm}^2\text{)} \quad (\text{III.1})$$

Dans le cas des éléments à faible potentiel d'ionisation, à l'équilibre thermodynamique les densités des ions positifs  $n_+$  ainsi que celles des atomes neutres  $n_0$  du même type en contact avec la surface métallique de l'ioniseur chauffé à la température  $T$  sont reliées par la loi de Saha-Langmuir par la relation suivante [Mis 93] :

$$\alpha = \frac{n_+}{n_0} = \frac{g_+}{g_0} \exp\left(\frac{\phi - E_i}{kT}\right) \quad (\text{III.2})$$

où  $\alpha$  est appelé le degré d'ionisation,  $g_+$  et  $g_0$  sont les poids statistiques définis respectivement pour les ions positifs et les atomes neutres. Leur rapport est égal à 0.5 pour les alcalins et alcalinoterreux.

$\phi$  : travail de sortie des électrons du métal.

$E_i$  : potentiel d'ionisation de l'atome à ioniser.

$k$  : constante de Boltzmann.

D'où l'efficacité d'ionisation est définie par :

$$\varepsilon_{ion} = \frac{n_+}{n_0 + n_+} = \frac{\alpha}{1 + \alpha} = \frac{1}{1 + \frac{g_0}{g_+} \exp\left(-\frac{\varphi - E_i}{kT}\right)} \quad (\text{III.3})$$

L'équation III.3 montre que l'obtention d'une bonne efficacité d'ionisation ( $\varepsilon_{ion} \approx 1$ ) nécessite que le terme exponentiel soit proche de zéro. Cette condition est réalisée lorsque le degré d'ionisation tend vers l'infini ( $\alpha \gg 1$ ). Pour une température de chauffage de l'ioniseur supérieure à la température d'atomisation de l'élément d'intérêt, l'obtention d'un degré d'ionisation important est conditionné par  $\varphi > E_i$ . Ce processus est donc particulièrement efficace pour les éléments ou molécules à faible potentiel d'ionisation comme le Cs, Rb et SrF, et BaF [Kir 97].

### III.2.1 Description de l'ensemble cible-source à ionisation de surface

L'ensemble cible source d'ions utilisé est un ensemble standard provenant d'ISOLDE (CERN). Présenté sur la figure III.1, il se compose d'un four cible (contenant la cible de fission) connecté à un tube de transfert permettant d'acheminer les produits de fission sortant de la cible vers le tube d'ionisation appelé ioniseur.

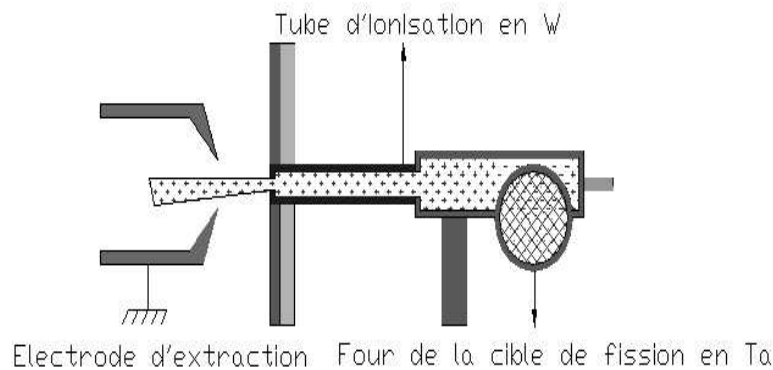


Figure III.1 : Schéma de la source à ionisation de surface.

Four de la cible  $UC_x$       Tube d'ionisation      Tube de transfert

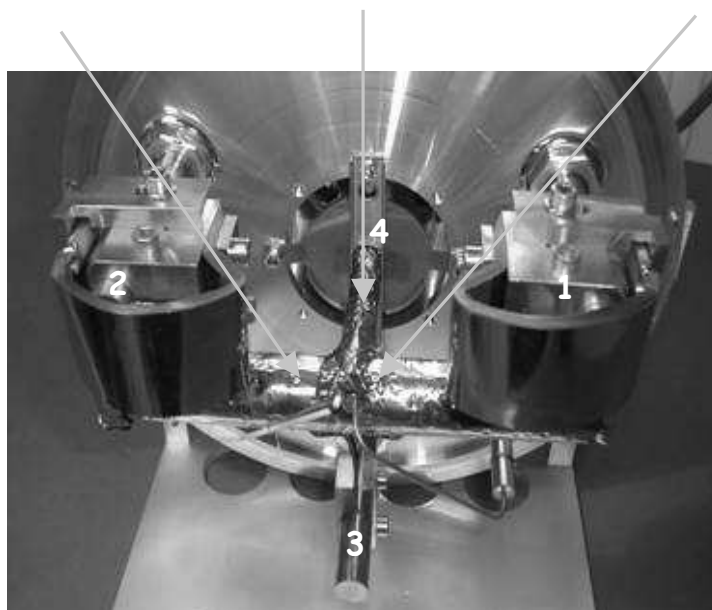


Figure III.2 : Photo de l'ensemble cible source à ionisation de surface utilisée à PARRNe 2 pour ioniser les radioisotopes du Cs et du Rb (1, 2, 3 et 4 : passages de courant). Il s'agit d'un ensemble standard d'ISOLDE - CERN.

### **L'ensemble four-cible de fission**

Le four cible est un tube en tantale d'épaisseur 0.5 mm, de diamètre intérieur 20 mm et de longueur 200 mm. Le choix s'est porté sur le tantale car parmi les matériaux réfractaires, il est le plus facile à usiner et le moins cher. Dans ce four se trouve un container en graphite servant à loger la cible de fission constituée d'une série de 148 pastilles d' $UC_x$ . Entre deux pastilles est intercalée une fibre en graphite afin de faciliter l'effusion des produits de fission en diminuant les effets de surface qui résulteraient d'un empilement trop serré de ces pastilles. Ce four est fixé sur deux passages de courant (1, 2) au moyen de connecteurs souples, assemblages de bandes de Ta, permettant la dilatation de l'ensemble cible source lors du chauffage tout en gardant le centrage du tube d'ionisation, solidaire de l'ensemble four-cible. Ce four-cible permet de chauffer par effet joule la cible de fission à plus de 2000 °C. La puissance de chauffage nécessaire à 2000 °C est de 2800 W.

En fonctionnement, lorsque la cible et la source sont à haute température, la bride de l'unité doit restée en dessous de 100 °C pour préserver les joints d'étanchéité en viton. Un circuit d'eau de refroidissement a donc été usiné dans la bride et dans les passages de courant en cuivre.

### Le tube d'ionisation

C'est un tube en tungstène de diamètre interne 3 mm, d'épaisseur 0.1 mm, et de longueur 21 mm. Il est emmanché en force dans le tube de transfert en tantale. Le tungstène a été choisi comme matériau d'ionisation pour trois raisons principales (voir Tab. III.1) : un travail de sortie élevé permettant d'ioniser sélectivement et efficacement le Rb et le Cs, une tension de vapeur très faible à 2000 °C, une température de fusion très élevée.

Pour le chauffage du tube d'ionisation on utilise le passage (3) de courant isolé de la bride. Le retour de courant se fait sur la plaque (4) de centrage fixé à l'extrémité du tube d'ionisation et relié à la bride. Le chauffage du tube d'ionisation aux alentours de 2000 °C (on peut chauffer beaucoup plus qu'à 2000 °C) s'effectue par effet de joule. A 2000 °C, sa puissance de chauffage est 1900 W.

Métal	$\phi$ (eV)	$T_f$ (°K)	$P_v$ (mbar)
Tantale	4.1	3269	$< 10^{-8}$
Molybdène	4.2	2883	$10^{-5}$
Tungstène	4.5	3683	$10^{-10}$
Rhénium	4.9	3453	$10^{-3}$
Iridium	5.4	2683	$10^{-5}$

Tableau III.1: Comparaison des caractéristiques des métaux réfractaires. Les pressions de vapeur des éléments réfractaires sont calculées à 2000 °C.

### Marqueur d'étalonnage du séparateur

Les intensités des faisceaux d'ions radioactifs produits à PARRNe 2 (cf. § I.3.2.1) sont faibles. Elles sont au mieux de l'ordre de quelques dixièmes de pico ampères et donc insuffisantes pour permettre d'optimiser les paramètres intervenant depuis la sortie de la source d'ions jusqu'au point de mesure : la position et l'inclinaison de l'électrode d'extraction, réglage des quadripôles situés avant l'aimant de séparation, des quadripôles de refocalisation après séparation magnétique des faisceaux d'isotope. C'est pourquoi nous avons mis des échantillons de ICs, de  $RbCO_3$  et de Ba métallique stables dans le container cible afin de produire un flux d'alcalins stables qui sera ionisé dans le tube d'ionisation. Les différents faisceaux d'ions stables extraits ont des intensités de quelques dizaines de nanoampères, permettant l'optimisation des paramètres de réglage du séparateur.

### III.3 La détection

Comme il a été développé au §I.3.2.1, après séparation électromagnétique le faisceau d'ions isobariques d'intérêt est implanté sur la bande d'un dérouleur située au bout de la ligne PARRNe 2 pour analyse. On constitue des sources radioactives formées de noyaux riches en neutrons dont on va étudier la décroissance et en particulier détecter les rayonnements  $\beta^-$ ,  $\gamma$  ou neutrons retardés émis. C'est en effet en déterminant le nombre de noyaux qui nous intéressent et qui se sont désintégrés dans des conditions expérimentales données que l'on va déterminer le nombre de noyaux qui sortent de la cible par seconde à la saturation. Et c'est en mesurant l'évolution au cours du temps de l'intensité d'une raie gamma caractéristique du noyau auquel on s'intéresse, dans des conditions expérimentales bien précises (cf. §III.5.2), que l'on mesurera le temps de relâchement. Nous avons donc associé trois types de détecteurs autour du point de collection, comme le montrent les figures III.3 et III.4. Il s'agit d'un détecteur plastique à scintillation pour les  $\beta$ , un détecteur germanium pour les  $\gamma$  et une batterie de chambres d'ionisation pour les neutrons. Nous avons de plus réalisé des mesures de coïncidences entre les signaux issus des détecteurs afin de supprimer le bruit de fond, ce qui permet une mesure précise du nombre de désintégrations d'un radioisotope. Ce nombre est déterminé en analysant le spectre gamma ou le spectre neutrons dans le cas où le radioisotope est faiblement émetteur gamma ( $^{99}\text{Rb}$ ,  $^{148}\text{Cs}$ ). Cependant, contrairement aux spectres neutrons et  $\beta$ , les spectres  $\gamma$  sont discrets et permettent donc d'identifier avec certitude les isotopes collectés sur la bande grâce aux raies  $\gamma$  d'énergie bien déterminée et caractéristique de leur désintégration.

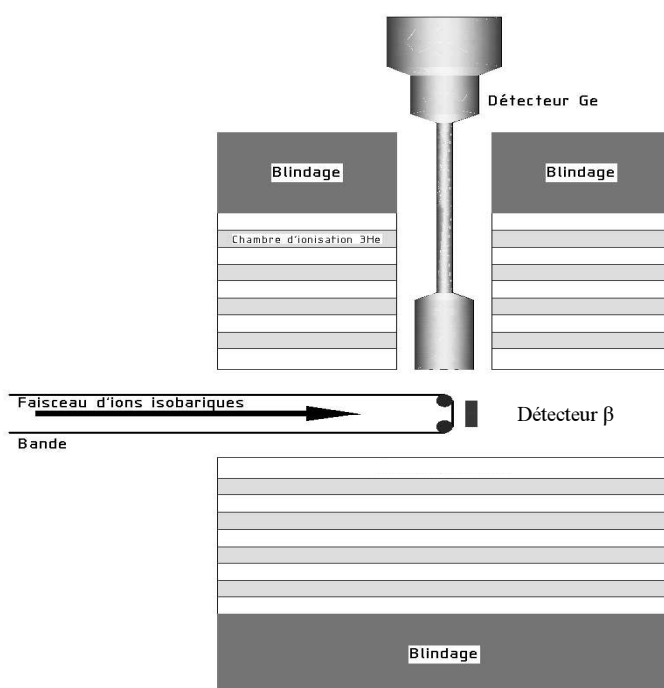


Figure III.3 : Système de détection utilisé pour l'expérience avec la source à ionisation de surface. Il comporte un détecteur germanium, un détecteur  $\beta$ , un détecteur de neutrons.

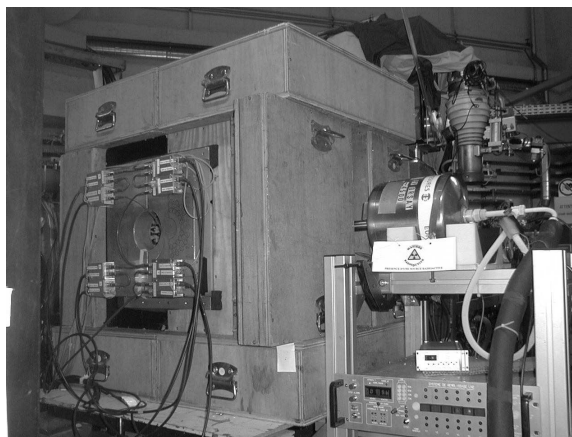


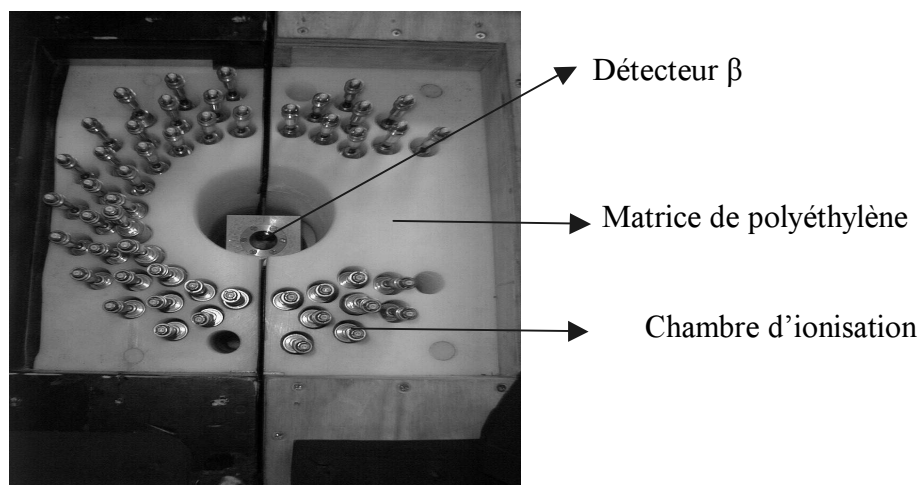
Figure III.4 : Photo de l'ensemble de détection utilisé à ALCAPARRNE.

**Le détecteur germanium** est placé comme le montre la figure III.3 sur l'axe du faisceau, derrière la bande d'implantation du faisceau. Ce détecteur possède une excellente résolution en énergie (1.9 KeV à la raie de 1332 KeV du  $^{60}\text{Co}$ ) et une efficacité de 18% [Rou 02].

**Le détecteur de neutrons** est un compteur proportionnel constitué de 49 chambres d'ionisations cylindriques remplies par de l' $^3\text{He}$  (Fig. III.5). Ces chambres sont logées dans une matrice en Polyéthylène entourant le point d'implantation du faisceau d'ions afin de permettre une détection dans un angle de  $4\pi$  [Sor 95]. Ce détecteur présente une efficacité constante de l'ordre de 31% jusqu'à une énergie de neutrons de 2 MeV.

Afin de prendre les précautions nécessaires au blindage du détecteur de neutrons, nous avons mesuré à l'aide d'un compteur  $\text{BF}_3$  le bruit de fond dû aux neutrons dans les conditions standards d'expérience. Or le bruit se situait en dessous du seuil de détection de ce détecteur :  $\sim 1.2$  neutrons/ $\text{cm}^2/\text{min}$ . Pendant l'expérience en ligne, le système de détection utilisé, (49 chambres d'ionisation), bien plus sensible, mesurait un bruit de  $6.3 \cdot 10^3$  neutrons/min, soit  $\sim 0.6$  neutrons/ $\text{cm}^2/\text{min}$ . Ce signal de bruit de fond était un signal continu qui noyait les signaux des neutrons émis par les isotopes collectés. Nous avons donc blindé le système de détection par l'emploi de 557 blocs de paraffine de 20 cm d'épaisseur. Cependant, des blocs ont été activés car on observait des raies gamma très intenses ne correspondant pas à l'isotope considéré. Pour remédier à cela, nous avons entouré les blocs par des bouteilles d'eau. Notre choix s'est porté sur l'utilisation de l'eau car c'est un bon absorbant de neutrons. De cette façon, le bruit de fond de neutrons a été réduit à 200 neutrons/min.





*Figure III.5 : Photo des chambres d'ionisation du détecteur de neutron de l'Institut für Kernchemie de Mayence.*

### **Le détecteur $\beta$**

C'est un plastique scintillant d'épaisseur 1 mm présentant une efficacité qui varie entre 5.2 % et 12% [Meh 96]. Ce détecteur est placé juste en face du point d'implantation du faisceau d'ions. Dans notre expérience, ce détecteur permet de réaliser les coïncidences  $\beta$ - $\gamma$  et  $\beta$ -n.

Pour l'acquisition des données, nous avons utilisé un système développé à l'IPN d'Orsay dont le cœur est constitué d'une carte COMET 6X (codage et marquage en temps). Le principe de fonctionnement de cette carte consiste à coder les amplitudes des signaux délivrés par au plus six détecteurs indépendants et d'associer à chaque amplitude un temps absolu de résolution 400 ps [Rou 02] qui permet d'avoir des bonnes performances dynamiques afin de suivre les événements en temps réel. Ce système est donc bien adapté pour réaliser des mesures de coïncidence et d'analyser en temps par exemple les mesures de temps de relâchement.

### III.4 Mesure de la production des isotopes de Rb et Cs.

#### III.4.1 Détermination de la production

Le système de détection que nous venons de décrire nous a permis d'obtenir les spectres des gammas et des neutrons émis lors de la décroissance des noyaux radioactifs collectés sur la bande. Les traitements de ces spectres pour déterminer le nombre de désintégrations sont analogues.

Le nombre de noyaux collectés par seconde sur la bande ( $\phi$ ), proportionnel au nombre de noyaux produits par seconde dans la cible à saturation quand le temps de relâchement est négligeable devant la période de l'isotope considéré, se calcule à partir du nombre total de désintégrations ( $N_d^T$ ) des noyaux implantés sur la bande. Afin d'obtenir suffisamment de statistique, la mesure de ( $N_d^T$ ) s'obtient par  $n$  cycles d'acquisition. Chaque cycle comporte deux étapes. Au cours de la première étape, nous collectons pendant un temps  $t_c$  les noyaux sur la bande. Dans la seconde étape, à l'aide d'un déviateur, nous interrompons l'implantation du faisceau sur la bande pendant un temps  $t_d$  (Fig. III.6).

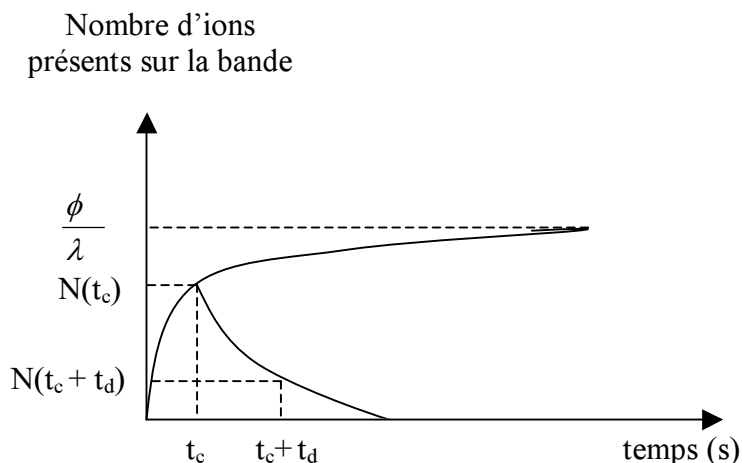


Figure III.6 : Courbe montrant l'évolution du nombre d'ions présents sur la bande pendant le cycle d'implantation et de décroissance.

#### Evaluation du nombre de désintégrations pendant l'implantation :

Le nombre de noyaux présents sur la bande à l'instant  $t$  s'écrit :

$$N(t) = \frac{\phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (\text{III.4})$$

Le nombre de désintégrations entre 0 et  $t_c$  est donné par :

$$N_c = \int_0^{t_c} \lambda N(t) dt = \phi t_c - \frac{\phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_c}) \quad (\text{III.5})$$

### **Evaluation du nombre de désintégrations après $t_c$**

Le nombre d'atomes présents à l'instant  $t_c$  sur la bande s'écrit :

$$N(t_c) = \frac{\phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_c}) \quad (\text{III.6})$$

Le nombre de noyaux présents sur la bande à l'instant  $t = t_c + t_d$  est donné par :

$$N(t_c + t_d) = \frac{\phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_c}) e^{-\lambda t_d} \quad (\text{III.7})$$

On déduit le nombre de désintégrations entre les instants  $t_c$  et  $t_c + t_d$ , par la différence entre les équations III.7 et III.8.

$$N = N(t_c) - N(t_c + t_d) = \frac{\phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_c}) - \frac{\phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_c}) e^{-\lambda t_d} \quad (\text{III.8})$$

Le nombre total de désintégrations est donné par la somme de désintégrations entre 0 et  $t_c + t_d$  :

$$N_d^T = N + N_c \quad (\text{III.9})$$

On peut ainsi remonter au nombre de noyaux collectés par seconde sur la bande  $\phi$  :

$$\phi = \frac{N_d^T}{t_c - \frac{1}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_c}) e^{-\lambda t_d}} \quad (\text{III.10})$$

Le nombre  $N_d^T$  est calculé à partir de la surface nette ( $S_{\text{net}}$ ) du pic gamma ou du spectre neutrons corrigée du temps mort ( $\tau_{\%}$ ) du détecteur, de l'efficacité du détecteur ( $\varepsilon(E\gamma)$  pour les gammas et  $\varepsilon_n$  pour les neutrons, du rapport d'embranchement ( $R$ ) de l'émission du gamma ou du neutron, et du nombre de cycles ( $n$ ). Il est donné par la relation suivante :

$$N_d^T = \frac{S_{\text{net}}}{(1 - \tau_{\%}).\varepsilon.R.n} \quad (\text{III.11})$$

L'analyse des spectres  $\gamma$  et neutrons a été effectuée en utilisant le programme SLABVIEW [Rab 98].

### III.4.2 Les résultats expérimentaux

Après ionisation et séparation électromagnétique, les faisceaux d'isotopes de Rb ou de Cs doivent être d'une grande pureté isobariques. En effet, parmi les contaminants possibles, ceux ayant les potentiels d'ionisation les plus faibles sont les alcalino-terreux Sr et Ba. Cependant, même pour ces éléments, l'efficacité d'ionisation estimée ne dépasse pas 2% vers 2000 °C. Ceci a été confirmé par l'analyse des spectres gammas dans lesquels la présence des alcalinoterreux Sr et Ba provient essentiellement de la décroissance du Rb et du Cs.

Sur la figure III.7 nous reportons la production des isotopes de Rb normalisée par l'intensité du faisceau de deutons, pour la cible UCx et le tube d'ionisation à 2050 °C. Jusqu'au  $^{88}\text{Rb}$  ( $T_{1/2} = 114$  ms) l'identification de ces isotopes a été effectuée en observant les raies gammas discrètes caractéristiques de leur décroissance. L'analyse des spectres neutroniques pour les isotopes (à partir du  $^{93}\text{Rb}$ ) ayant un rapport d'embranchement supérieur à 1% permet également de déterminer la production. La comparaison des productions obtenues par cette analyse avec celles obtenues par les spectres gammas permet de confirmer la fiabilité des mesures. Nous trouvons une précision relative de mesure variant de 70% jusqu'à 96%.

L'isotope le plus riche en neutrons observé,  $^{99}\text{Rb}$  ( $T_{1/2} = 50.3$  ms), n'a pu être identifié qu'avec son spectre de neutrons. Il était donc important de s'assurer que seul cet isotope a contribué à la constitution de ce spectre. À cette masse le seul autre émetteur de neutrons est le  $^{99}\text{Sr}$  ( $T_{1/2} = 270$  ms). Son efficacité d'ionisation est 100 fois plus petite que celle du Rb. D'autre part il possède un rapport d'embranchement neutronique très faible (0.1% contre 21% pour le  $^{99}\text{Rb}$ ). Si une partie substantielle des neutrons détectés venait de  $^{99}\text{Sr}$ , on aurait dû observer les raies gamma signant sa désintégration. Par conséquent, il est certain que le spectre de neutrons observé à cette masse est dû principalement au  $^{99}\text{Rb}$ .

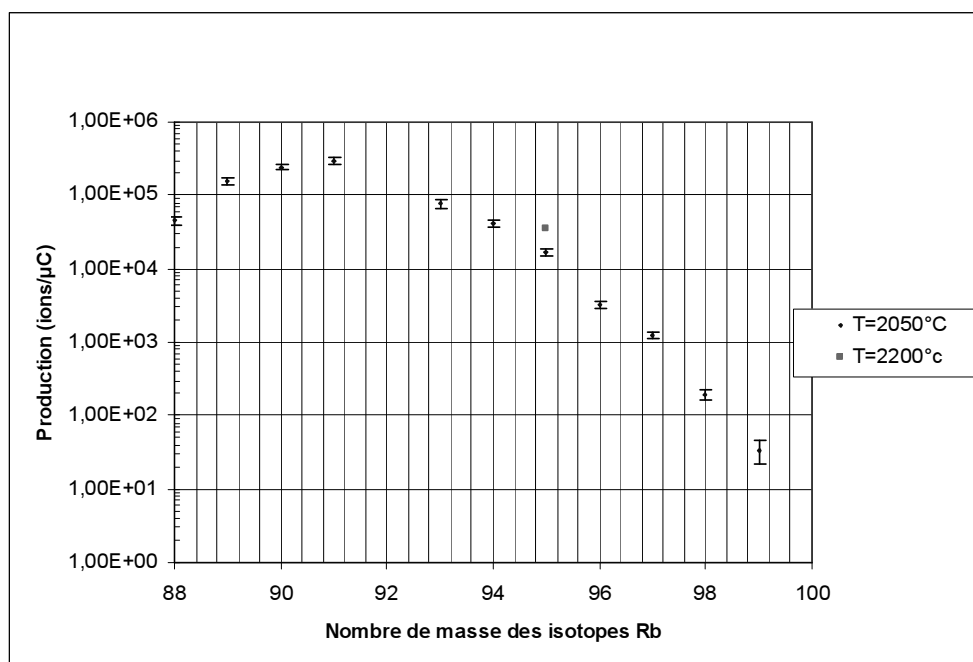


Figure III.7 : Production en ions/μC des isotopes du Rb produits auprès de PARRNe avec une cible de carbure d'uranium et un ioniseur chauffés à 2050 °C. Le carré rouge représente la production du  $^{95}\text{Rb}$  avec une cible et un ioniseur portés respectivement à 2200 °C et 2500 °C.

Nous reportons dans la figure III.8 la production des isotopes de Cs normalisée par l'intensité du faisceau de deutons. Tous les isotopes du Cs ont été identifiés par leur spectre gamma sauf le  $^{147}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 225$  ms) dont l'identification n'a été possible qu'avec son spectre neutrons.

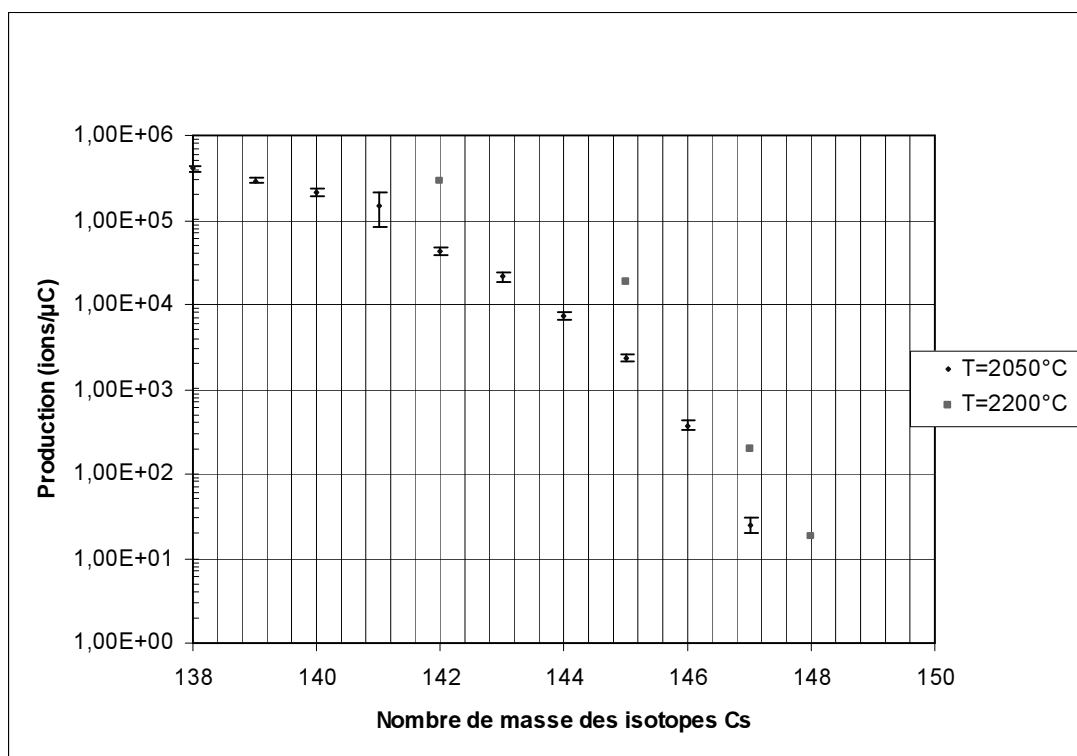


Figure III.8 : Production en ions/μC des isotopes du Cs produits par PARRNe avec une cible de carbure d'uranium et un ioniseur chauffés à 2050 °C. Les carrés rouges sont les productions avec une cible et un ioniseur portés respectivement à 2200 °C et 2500 °C.

La figure III.9 représente la production des isotopes d'In normalisée par l'intensité du faisceau de deutons. Tous les isotopes d'In ont été identifiés par leur spectre gamma.

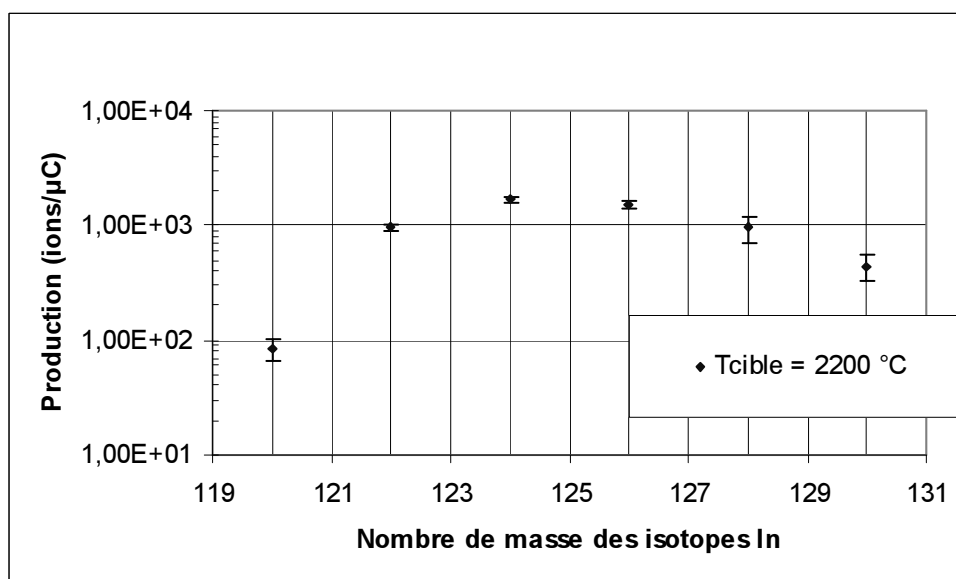


Figure III.9: Production en ions/μC des isotopes d'In Produits par PARRNe pour une cible et un ioniseur portés respectivement à 2200 °C et 2500 °C.

## Influence de la température sur la production

Après avoir mesuré les productions des isotopes du Rb et du Cs à des températures de chauffage de la cible et du tube d'ionisation de 2050 °C, nous avons effectué une autre mesure sur quelques isotopes en augmentant les conditions de chauffage. Pour cela nous avons porté la cible de fission à 2200 °C afin d'améliorer son efficacité de relâchement, quant au tube d'ionisation il a été chauffé à 2500 °C dans le but de réduire le temps de désorption des ions. Dans ces conditions, nous avons réussi à observer le  $^{148}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 158$  ms) à raison de  $18 \pm 3$  ions/ $\mu\text{C}$ . Nous observons un gain des productions de Cs et de Rb lorsque la température de la cible et du tube d'ionisation augmente. Ce gain est d'un facteur 3 pour le  $^{95}\text{Rb}$  ( $T_{1/2} = 378$  ms) et d'un facteur 7.5 pour les isotopes de Cs mesurés. Ce qui confirme la diminution du temps de relâchement et du temps de désorption lorsque la température augmente. Quant à la diminution de l'efficacité d'ionisation, elle est d'après l'équation de Saha-Langmuir négligeable.

Le gain en production pour le Rb est nettement plus faible que pour le Cs. Cette observation nous amène à déduire que la vitesse de diffusion du Cs est plus rapide puisque ces deux éléments ont des propriétés physico-chimiques similaires. Ceci est en accord avec le fait que le Cs est plus volatil.

### ***III.5 Mesure des temps de relâchement du Rb et du Cs***

Pour la détermination des temps de relâchement nous avons exploité deux méthodes décrites en détails dans la référence [Rou 02]. La première méthode, indirecte, est basée sur la comparaison entre les productions des isotopes mesurées en bout de ligne et les estimations de production dans la cible. Cette méthode permet de déduire le mécanisme prédominant dans le relâchement : diffusion ou effusion. La seconde méthode consiste à mesurer directement la courbe de relâchement pour un isotope donné.

#### **III.5.1 Mesure indirecte**

Pour une série d'isotopes d'un élément chimique donné, les productions mesurées sur la bande ( $\phi$ ) sont reliées aux productions dans la cible ( $\phi_c$ ) par :

$$\phi = \phi_c \cdot \epsilon_r \cdot \epsilon_{ion} \cdot \epsilon_{tr} \quad (\text{III.12})$$

Où  $\epsilon_r$  est l'efficacité de relâchement de la cible

$\epsilon_{ion}$  est l'efficacité d'ionisation de la source à ionisation de surface

$\epsilon_{tr}$  est l'efficacité de transport du séparateur

On peut donc écrire :

$$\phi / \phi_c = \varepsilon_r \cdot \varepsilon_{ion} \cdot \varepsilon_{tr} = cst \cdot \varepsilon_r \quad (III.13)$$

l'efficacité de transport ne dépendant pas de l'isotope considéré et l'efficacité d'ionisation étant constante pour un élément donné.

Nous avons vu au chapitre II que les mécanismes de relâchement prépondérant des noyaux radioactifs sont l'effusion ou la diffusion granulaire. Si le processus de relâchement est prédominé par l'effusion alors son efficacité  $\varepsilon_r$  est donnée par :

$$\varepsilon_r = \frac{T_{1/2}}{T_{1/2} + T_R} \quad (III.14)$$

Si le processus de relâchement est contrôlé principalement par la diffusion, alors son expression dépend de la structure de la cible [Kir 92, Por 02]. Dans le cas d'une cible à grain sphérique, l'efficacité de relâchement est donnée par :

$$\varepsilon_r = \frac{3(\sqrt{\pi^2 T_R / T_{1/2}} \coth(\sqrt{\pi^2 T_R / T_{1/2}}) - 1)}{\pi^2 T_R / T_{1/2}} \quad (III.15)$$

Dans la figure III.10 nous avons tracé les courbes caractéristiques de l'efficacité de relâchement en fonction des différentes valeurs du rapport  $T_R/T_{1/2}$  pour la diffusion et l'effusion. Nous remarquons que lorsque la période de l'isotope considéré est longue devant le temps de relâchement, ( $T_R/T_{1/2} \leq 0.01$ ), l'efficacité de relâchement est proche de 1. Lorsque la période de l'isotope considéré est plus petite que le temps de relâchement, ( $T_R/T_{1/2} \geq 5$ ), l'efficacité de relâchement pour la diffusion est différente de celle obtenue pour l'effusion. C'est en effet sur les isotopes de période courte que l'influence du temps de relâchement est la plus grande. Nous pouvons déterminer le processus principal qui gouverne le relâchement des éléments, en examinant le comportement du rapport  $\phi / \phi_c$  en fonction de  $1/T_{1/2}$ . Dans le cas où le processus de relâchement est gouverné principalement par l'effusion, la pente de la partie asymptotique est égale à -1, dans le cas de la diffusion la pente est égale à -0.5.



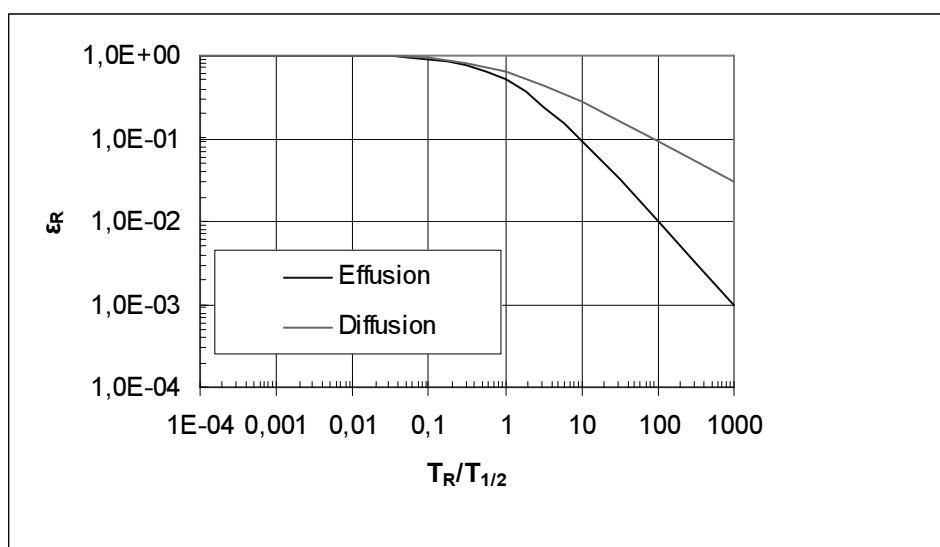


Figure III.10 : Efficacité de relâchement  $\epsilon_r$  en fonction de  $T_R/T_{1/2}$ , rapport entre le temps de relâchement et la période des isotopes.

Après avoir déterminé le processus de relâchement à partir du comportement " asymptotique " de  $\phi/\phi_c$  en fonction de  $1/T_{1/2}$ , nous déduisons la valeur du temps de relâchement  $T_R$  en ajustant par la méthode des moindres carrés les valeurs  $\phi/\phi_c$  aux valeurs calculées pour l'efficacité de relâchement données dans les équations III.14 ou III.15.

### III.5.1.1 Calcul de production des isotopes dans la cible

Les neutrons générés par l'interaction d'un faisceau de deutons de 26 MeV sur un convertisseur en graphite ont une énergie moyenne de 10 MeV et une distribution énergétique ayant une largeur à mi-hauteur de 10 MeV.

Le nombre de fissions ( $N_f$ ) induits dans la cible par ces neutrons est de  $6.4 \cdot 10^8$  fissions/ $\mu\text{C}$ , d'après le code FICNER. La production  $\phi_c$  de chaque isotope dans la cible de fission est donnée par :

$$\phi_c = N_f Y(\%) / 100 \quad (\text{III.16})$$

où  $Y(\%)$  est le rendement de fission pour l'isotope considéré.

Actuellement il n'existe pas de données suffisantes sur le rendement de fission pour une énergie de neutrons de 10 MeV. Nous avons donc utilisé les rendements de fission cumulés  $Y$  donnés par England et Rider [Eng], pour une énergie de neutrons de 14.7 MeV. Cette valeur d'énergie est la plus proche, parmi les données disponibles, de notre distribution neutronique. Dans le tableau III.2 nous avons reporté les valeurs du rendement de fission des isotopes de Rb et Cs ainsi que leur incertitude  $\Delta Y$ . La combinaison de ces données avec les

productions  $\phi$  et leur incertitude  $\Delta\phi$  nous permettent dans ce qui suit d'estimer le temps de relâchement  $T_R$ .

Isotope	$T_{1/2}(s)$	Y(%)	$\Delta Y(\%)$	$\phi$ (atomes/ $\mu C$ )	$\Delta\phi$ (atomes/ $\mu C$ )
<sup>88</sup> Rb	$1.06 \times 10^3$	2.17	2	$4.48 \times 10^4$	$5.89 \times 10^3$
<sup>89</sup> Rb	$9.09 \times 10^2$	2.92	2.8	$1.57 \times 10^5$	$1.82 \times 10^4$
<sup>90</sup> Rb	$1.58 \times 10^2$	2.51	6	$2.44 \times 10^5$	$1.97 \times 10^4$
<sup>91</sup> Rb	$5.84 \times 10$	3.8	11	$2.99 \times 10^5$	$3.74 \times 10^4$
<sup>93</sup> Rb	5.84	3.4	23	$7.63 \times 10^4$	$9.4 \times 10^3$
<sup>94</sup> Rb	2.7	2.76	23	$4.15 \times 10^4$	$4.52 \times 10^3$
<sup>95</sup> Rb	$3.77 \times 10^{-1}$	1.51	23	$1.68 \times 10^4$	$1.57 \times 10^3$
<sup>96</sup> Rb	$1.99 \times 10^{-1}$	$7.2 \times 10^{-1}$	45	$3.25 \times 10^3$	$3.26 \times 10^2$
<sup>97</sup> Rb	$1.69 \times 10^{-1}$	$1.9 \times 10^{-1}$	> 64	$1.23 \times 10^3$	$1.21 \times 10^2$
<sup>98</sup> Rb	$1.07 \times 10^{-1}$	$4 \times 10^{-2}$	> 64	$1.94 \times 10^2$	$3.28 \times 10$
<sup>138</sup> Cs	$2 \times 10^3$	4.84	4	$4.08 \times 10^5$	$3.9 \times 10^4$
<sup>139</sup> Cs	$5.56 \times 10^2$	4.78	11	$2.96 \times 10^5$	$3 \times 10^4$
<sup>140</sup> Cs	$6.37 \times 10^1$	4.47	16	$2.14 \times 10^5$	$1.97 \times 10^4$
<sup>141</sup> Cs	$2.49 \times 10^1$	3.85	16	$1.48 \times 10^5$	$6.25 \times 10^4$
<sup>142</sup> Cs	1.7	2.88	23	$4.25 \times 10^4$	$4.71 \times 10^3$
<sup>143</sup> Cs	1.78	1.97	23	$2.17 \times 10^4$	$2.77 \times 10^3$
<sup>144</sup> Cs	1.01	$9.34 \times 10^{-1}$	45	$7.28 \times 10^3$	$7.77 \times 10^2$
<sup>145</sup> Cs	$5.94 \times 10^{-1}$	$2.77 \times 10^{-1}$	> 64	$2.36 \times 10^3$	$2.42 \times 10^2$
<sup>146</sup> Cs	$3.21 \times 10^{-1}$	$5.85 \times 10^{-2}$	> 64	$3.7 \times 10^2$	$4.62 \times 10$

Tableau III.2 : Rendements de fission des isotopes de Rb, Cs donnés par [Eng] pour une énergie de neutrons de 14.7 MeV.

### III.5.1.2 Temps de relâchement de Rb et Cs

A partir des données du tableau III.2 on porte les points représentant le rapport  $\phi / \phi_c$  en fonction de  $1/T_{1/2}$ , ainsi que le fit obtenu en prenant pour processus prédominant la diffusion (Fig III.11, III.12). Les points correspondants aux isotopes <sup>88</sup>Rb et <sup>89</sup>Rb s'écartent notablement de l'ensemble des autres points, il semblerait que leurs productions soient sous-estimées. En regardant les cycles utilisés pour déterminer la production de ces éléments, on remarque que le temps de comptage (60 s) était faible par rapport à la période décroissance radioactive. C'est pourquoi nous ne les avons pas pris en compte dans le calcul de la courbe (Fig. III.8). Pour le <sup>147</sup>Cs, son rendement de fission est inconnu. Dans les deux cas (Cs, Rb), le comportement asymptotique des points figurant sur les courbes III.11 et III.12 est en faveur de la diffusion. Dans cette hypothèse, les temps de relâchement sont estimés à  $164 \pm 120$  s pour le Rb et de  $65 \pm 18$  s pour le Cs. L'importance des barres d'erreur provient principalement des incertitudes données par les rendements de fission. En comparant ces temps de relâchement on déduit que le Cs diffuse plus rapidement que le Rb malgré sa plus

grande taille. Ceci est en accord avec la faible volatilité du Cs par rapport au Rb et l'évolution des productions de ces deux isotopes en fonction de la température de la cible et du tube d'ionisation rapportée plus haut.

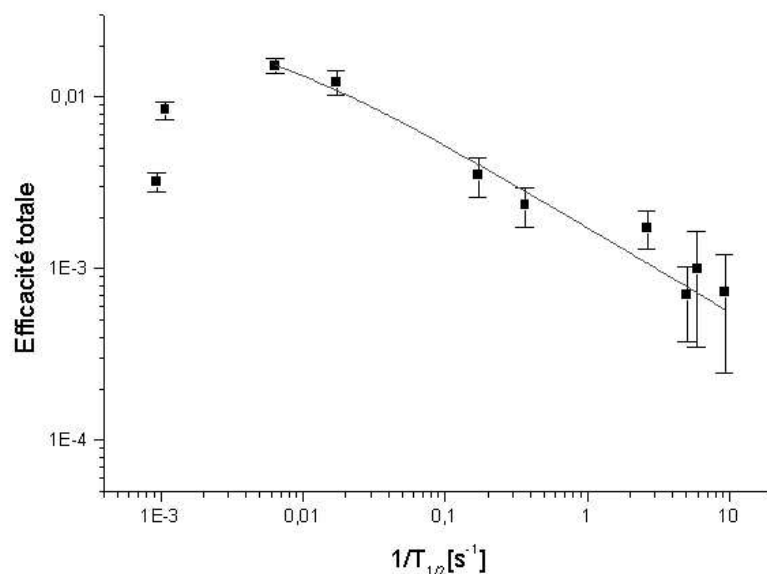


Figure III.11 : Fit des points représentant le rapport  $\phi/\phi_c$  en fonction de l'inverse de la période  $1/T_{1/2}$  de chaque isotope du Rb.

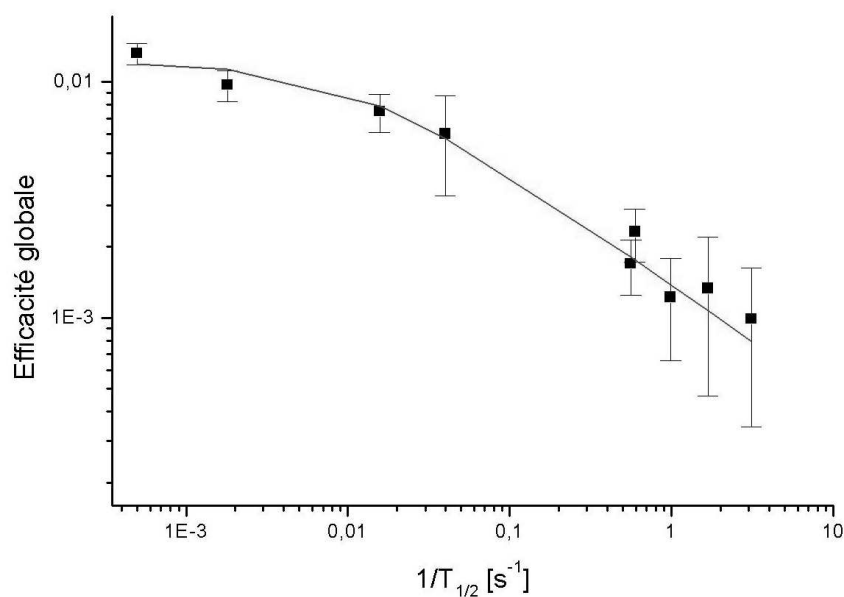


Figure III.12 : Fit des points représentant le rapport  $\phi/\phi_c$  en fonction de l'inverse de la période  $1/T_{1/2}$  de chaque isotope du Cs.

### III.5.2 Mesure directe

Le principe de la mesure est le suivant : de  $t = 0$  à  $t_{\text{irrad}}$  le faisceau de deutons interagit avec le convertisseur et les neutrons irradiant la cible. Ensuite de  $t = t_{\text{irrad}}$  à  $t_{\text{count}}$  le faisceau de deutons n'arrive plus sur le convertisseur, par contre le faisceau d'ions continue à arriver sur la bande car contrairement aux mesures de production le déviateur n'est plus utilisé. Ainsi tant que les noyaux de l'isotope qui nous intéresse sortent de la cible, ils sont collectés sur la bande. Les rayonnements émis par les noyaux présents sur la bande sont détectés depuis  $t = 0$  jusqu'à  $t_{\text{count}}$ . Ce cycle de mesure est répété plusieurs fois pour obtenir une bonne statistique. Avec la carte COMET, chaque énergie codée étant associée à un temps  $t$ , on constitue hors ligne une matrice  $E_\gamma$ - $t$ . On sélectionne ensuite dans cette matrice des tranches en énergie correspondant aux transitions  $\gamma$  caractéristiques de la décroissance du noyau que l'on étudie et l'on obtient un spectre représentant en fonction du temps une grandeur proportionnelle au nombre de désintégrations des noyaux présents sur la bande. Ce nombre de désintégrations peut être exprimé en fonction du temps de relâchement, des conditions de mesure ( $t_{\text{irrad}}$ ,  $t_{\text{count}}$ ), et de la période de décroissance radioactive de l'isotope ( $T_{1/2}$ ) et l'on déterminera le temps de relâchement en ajustant par la méthode des moindres carrés, les valeurs calculées à la courbe expérimentale

Lorsque le relâchement est contrôlé par l'effusion la fonction de relâchement est une simple fonction exponentielle [Rou 02]. Cependant, nos mesures par la méthode indirecte ont montré que le processus principal qui gouverne le relâchement des isotopes de Rb et Cs est la diffusion. Pour calculer le nombre de désintégrations en fonction du temps dans le cas de la diffusion, nous avons utilisé la fonction de relâchement donnée dans la référence [Rud 87] :

$$p(t) = \sum_{k=1}^{\infty} q_k e^{-u_k t} \quad (\text{III.17})$$

Avec  $q_k = \frac{6\mu_0}{\pi^2}$ ,  $u_k = k^2 \mu_0$

$\mu_0$  est une constante qui dépend du coefficient de diffusion de l'isotope dans la matrice et du rayon  $r$  des grains de la cible, son expression est donnée par  $\mu_0 = \pi^2 D / r^2$ .

On peut montrer que le nombre de désintégrations  $N_d(t_1, t_2)$ , pendant ou après l'irradiation peut être exprimé comme la somme des solutions spécifiques correspondant à une fonction de relâchement simple  $p_k = q_k e^{-u_k t}$  (pour le détail de calcul cf. [Rou]).

Finalement on obtient les expressions suivantes :

Pour  $0 \leq t_1 \leq t_2 \leq t_{\text{irrad}}$

$$N_d(t_1, t_2) = \varepsilon_s \phi \frac{6\mu_0}{\pi^2} \sum_{k=1}^{\infty} \left( \frac{t_2 - t_1}{\lambda + k^2 \mu_0} + \frac{e^{-\lambda t_2} - e^{-\lambda t_1}}{\lambda k^2 \mu_0} + \frac{\lambda (e^{-(\lambda+u_k)t_2} - e^{-(\lambda+u_k)t_1})}{(\lambda + k^2 \mu_0)^2 k^2 \mu_0} \right) \quad (\text{III.18})$$

Pour  $t_{\text{irrad}} \leq t_1 \leq t_2$

$$N_d(t_1, t_2) = \varepsilon_s \phi \frac{6}{\pi^2} \sum_{k=1}^{\infty} \left( \frac{(1 - e^{-\lambda t_{\text{irrad}}})(e^{-\lambda t_2} - e^{-\lambda t_1})}{\lambda k^2} - \frac{\lambda (1 - e^{-(\lambda+u_k)t_{\text{irrad}}})(e^{-(\lambda+u_k)t_2} - e^{-(\lambda+u_k)t_1})}{(\lambda + k^2 \mu_0)^2 k^2} \right) \quad (\text{III.19})$$

Les équation III.18 et III.19 dépendent du temps de relâchement de l'élément par l'intermédiaire de  $\mu_0 = \ln 2 / T_R$  et de  $u_k$ . Elles permettent de fitter respectivement la partie d'irradiation et de décroissance de la courbe de relâchement obtenue.

Dans les expressions de  $N_d(t_1, t_2)$ , la contribution des parents  $^{140}\text{Xe}$  ( $T_{1/2} = 13.6$  s),  $^{91}\text{Kr}$  ( $T_{1/2} = 8.57$  s) qui se désintègrent par  $\beta^-$  en donnant respectivement les éléments  $^{140}\text{Cs}$ ,  $^{91}\text{Rb}$  n'est pas prise en compte. Les équations III.18 et III.19 pourront donc être utilisées si les Xe et les Kr formés dans la cible sortent "immédiatement" de celle-ci et sont "perdus" dans le séparateur. Cette approximation suppose que leur temps de relâchement est très petit respectivement par rapport à celui du Cs et du Rb. Ce qui est le cas d'après nos mesures,  $T_R(\text{Xe}) = 15$  s  $\ll T_R(\text{Cs}) = 135$  s,  $T_R(\text{Kr} = 8.3$  s)  $\ll T_R(\text{Rb}) = 65$  s [Rou 02].

Pour ajuster par la méthode des moindres carrés les courbes expérimentales de relâchement aux équations III.18 et III.19, nous procédons de la manière suivante :

- Premièrement nous calculons à partir des équations III.18 et III.19 un spectre théorique pour un temps de relâchement donné  $T_R$  et un isotope donné correspondant à nos conditions expérimentales ( $t_{\text{irrad}}$ ,  $\Delta t = t_2 - t_1$ ) à l'aide d'un programme écrit en langage Fortran, la somme numérique est effectuée sur les 1000 premiers termes pour s'assurer d'une somme convergente.
- Ensuite nous ajustons le spectre théorique calculé à la courbe expérimentale de relâchement par la méthode des moindres carrés. On recommence le processus pour une autre valeur de  $T_R$ .
- Finalement on déduit le temps de relâchement  $T_R$  le plus probable, donné par le  $\chi^2$  minimum.

La figure III.13 présente l'évolution du  $\chi^2$  en fonction de  $T_R$ , la figure III.14 est la courbe de relâchement mesurée pour le  $^{91}\text{Rb}$  et le meilleur fit obtenu, correspondant à  $T_R = 135$  s

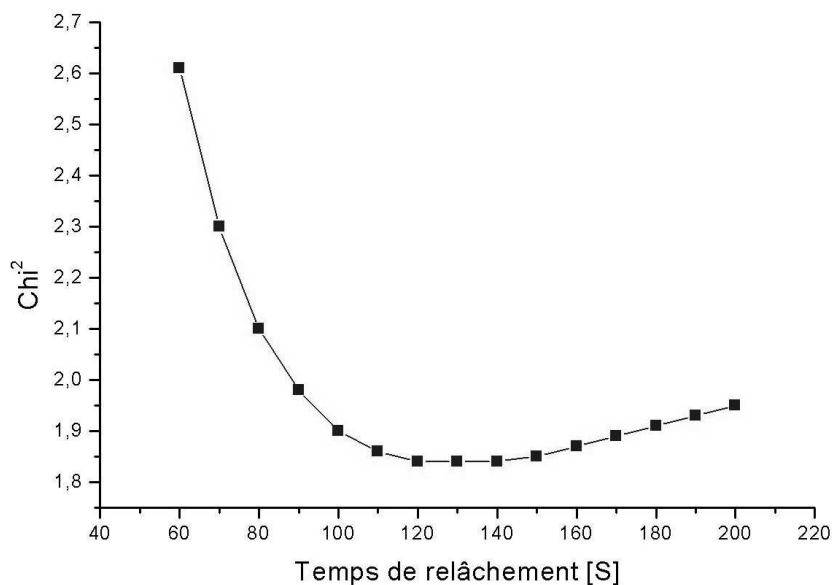


Figure III.13 : Ecart quadratique moyen  $\chi^2$  en fonction de temps de relâchement  $T_R$  obtenue par le fit de la courbe de relâchement du  $^{91}\text{Rb}$  ( $T_{1/2} = 58.4$  s).

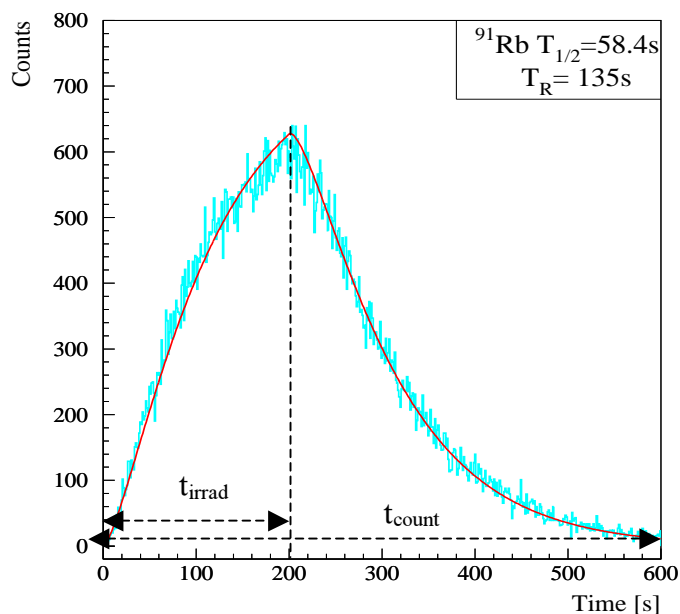


Figure III.14: Fit de la courbe de relâchement du  $^{91}\text{Rb}$  ( $T_{1/2} = 58.4$  s) obtenu avec le minimum de  $\chi^2$  ( $T_R$ ).

Pour le  $^{140}\text{Cs}$  trois valeurs de période ont été publiées [Ehr 72, Alv 68, Car 69]. Elles ont été utilisées afin d'analyser la courbe de relâchement obtenue. Dans la figure III.15 les

trois courbes représentant l'évolution de  $\chi^2$  en fonction du temps de relâchement sont données pour les valeurs de périodes  $T_{1/2} = 67.9$ ,  $65.5$  et  $63.7$  s. La valeur de  $T_R$  correspondant au minimum du  $\chi^2$  est extrêmement dépendante de la valeur de  $T_{1/2}$ , comme le montrent les résultats présentés dans le tableau III.3. Il est extrêmement difficile de choisir entre l'une de ces trois valeurs puisque les valeurs de  $\chi^2$  sont trop voisines. La comparaison des spectres calculés avec la courbe expérimentale ne permet pas non plus de trancher. Cependant la comparaison des courbes  $\chi^2$  en fonction de  $T_R$  permet de noter que le minimum du  $\chi^2$  pour la période de  $67.9$  s est plus net. Nous pensons que le temps de relâchement le plus probable est celui qui correspond à cette période, sa valeur est de  $60 \pm 20$  s.

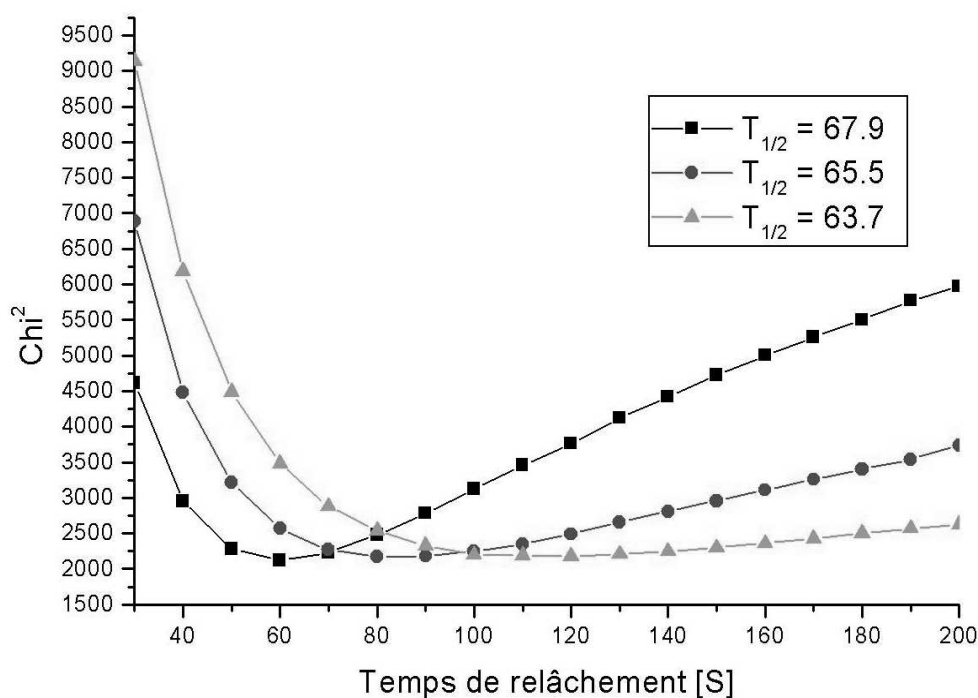


Figure III.15 : Ecart quadratique moyen  $\chi^2$  en fonction de  $T_R$  obtenu par ajustement par la méthode de moindres carrés de la courbe de relâchement de  $^{140}\text{Cs}$ . Dans la littérature trois valeurs de  $T_{1/2}$  ont été publiées. Le meilleur ajustement est obtenu pour  $T_{1/2} = 67.9$  s.

Isotope	$T_{1/2}$ (s)	$T_R$ (s)
$^{140}\text{Cs}$	$67.9 \pm 0.8$	$60 \pm 20$
	$65.7 \pm 1.6$	$80 \pm 30$
	$63.7 \pm 0.3$	$119 \pm 50$

Tableau III.3 : Les différentes valeurs de  $T_R$  en fonction des périodes publiées de  $^{140}\text{Cs}$ .

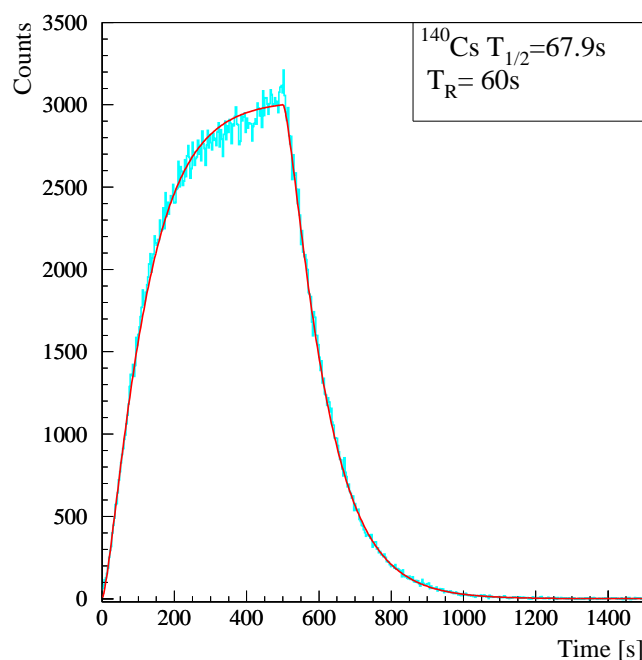


Figure III.16 : Fit de la courbe de relâchement du  $^{140}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 67.9 \text{ s}$ ) avec le spectre théorique calculé à  $T_R = 60 \text{ s}$ .

### III.5.3 Discussion des résultats

Les résultats concernant les temps de relâchement obtenus par les deux méthodes, directe et indirecte, sont présentés dans le tableau III.4. Pour ces deux isotopes, les temps de relâchement obtenus par les deux méthodes sont proches. Ceci semble indiquer que les rendements de fission à 14 MeV sont assez voisins, en valeur relative, des rendements de fission correspondant à la distribution de neutrons obtenue avec des deutons de 26 MeV sur un convertisseur.

Isotope	Mesure directe $T_R$ (s)	Mesure indirecte $T_R$ (s)
<b>Cs</b>	<b><math>60 \pm 20</math></b>	<b><math>65 \pm 18</math></b>
<b>Rb</b>	<b><math>135 \pm 40</math></b>	<b><math>164 \pm 120</math></b>

Tableau III.4 : Comparaison des temps de relâchement obtenus par les deux méthodes dans la condition de chauffage de la cible et l'ioniseur à 2050°C.

Les temps de relâchement pour la cible à 2200 °C et la source à 2500 °C n'ont malheureusement pas pu être mesurés lors de cette expérience. Cependant, nous pouvons



l'estimer pour le Cs avec les données recueillies. En effet, la production de chaque isotope dans la cible de fission peut être exprimée d'une part par :

$$\phi_c = \frac{\phi}{\varepsilon_r \varepsilon_{ion} \varepsilon_s} \quad (III.20)$$

et d'autre part :

$$\phi_c = N_f Y(\%) / 100 \quad (III.21)$$

On peut donc écrire pour deux isotopes de masse  $A_1$  et  $A_2$  :  $\frac{\phi_c(A_1)}{\phi_c(A_2)} = \text{cst}$  et

$$\frac{\phi_c(A_1)}{\phi_c(A_2)} = \frac{\phi(A_1) \varepsilon_r(A_2)}{\phi(A_2) \varepsilon_r(A_1)}.$$

À 2050 °C, les productions ainsi que le temps de sortie ont été mesurés. On peut donc déterminer  $\frac{\phi_c(142)}{\phi_c(147)} = 657$ . À 2200 °C, seules les productions ont été mesurées, mais nous pourrions tracer l'évolution de  $\frac{\phi_c(142)}{\phi_c(147)}$  en fonction du temps de relâchement (voir Fig. III.17). Le temps de relâchement à 2200 °C est alors donné par le point d'intersection entre cette courbe et la droite d'équation  $\frac{\phi_c(142)}{\phi_c(147)} = 657$ , c'est-à-dire  $T_R(2200 \text{ °C}) \sim 4 \text{ s}$ .

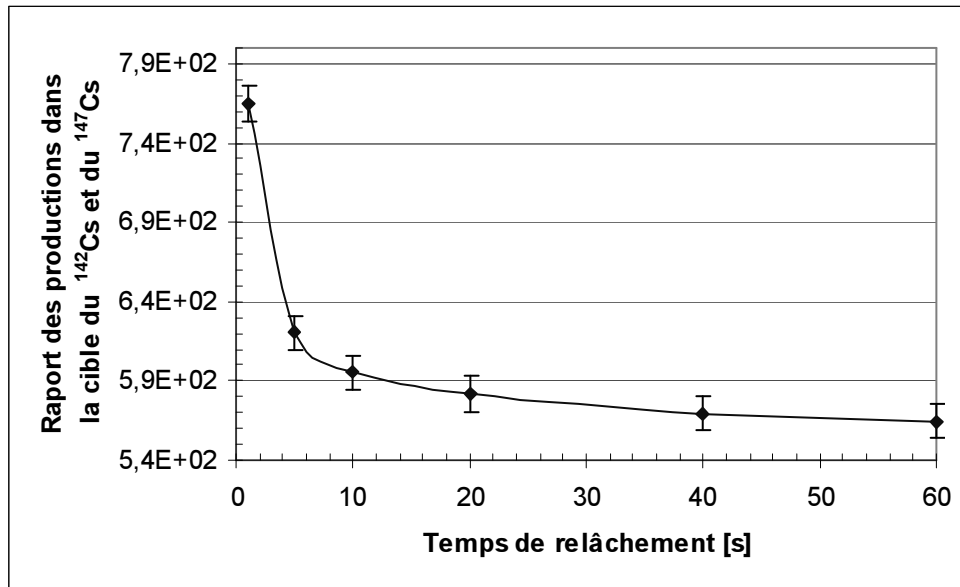


Figure III.17 : L'évolution de  $\phi_c(142)/\phi_c(147)$  en fonction temps de relachement à 2200°C.

De la même façon on étudie l'évolution du rapport  $\phi_c(142)/\phi_c(145)$  en fonction du temps de relâchement  $T_R$  (Fig. III.19).

Le rapport  $\phi_c(142)/\phi_c(145)$  est déterminé à partir des mesures à 2050 °C est égal à 10.9 d'où l'on déduit un temps de relâchement  $T_R \sim 2$  s. L'ordre de grandeur de ces deux déterminations est le même, on peut donc considérer qu'à 2200 °C le temps de relâchement est  $\sim 3$ s.

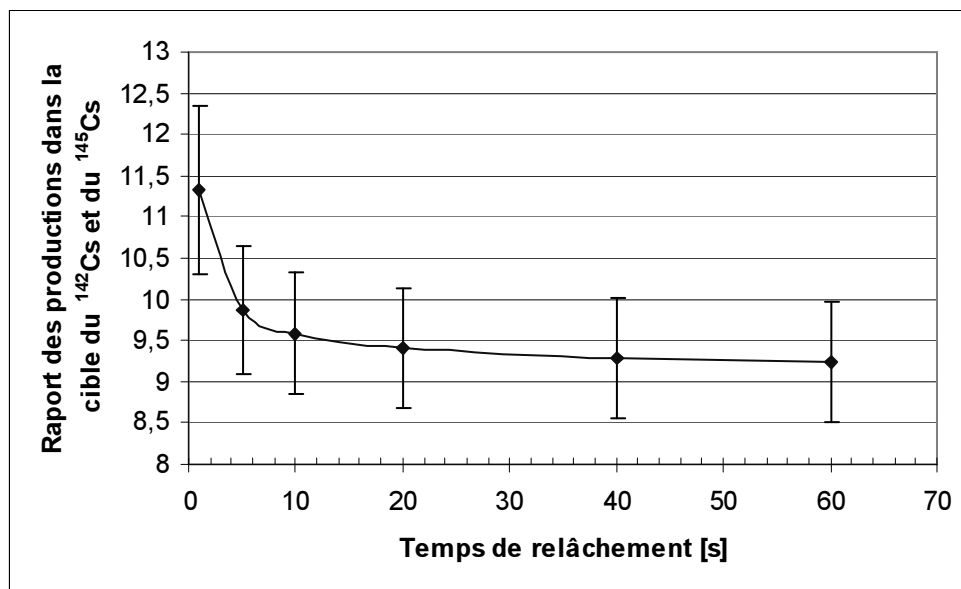


Figure III.18 : L'évolution du rapport  $\frac{\phi_c(142)}{\phi_c(145)}$  en fonction du temps de relâchement.

Des mesures de temps de relâchement ont été faites [Rud 90]. Bien que les conditions de production aient été relativement différentes des nôtres, la comparaison de nos résultats avec les leur présente une certaine cohérence (Tab. III.5).

Elément	Temps de relâchement (s)			
	1500 °C [Rud 90]	2050 °C	2200 °C	2400 °C [Rud 90]
Cs	80	60 ± 20	3	1.1
Rb	150	135 ± 40	-	1.5

Tableau III.5 : Comparaison des temps de relâchement du Rb et Cs avec ceux obtenus dans [Rud 90] à 1500 °C et 2400°C.

### III.5.4 Comparaison des rendements de fission relatifs mesurés avec ceux de la littérature

Les rendements cumulés de fission induite par différentes particules comme les neutrons thermiques, les particules chargées à haute énergie, et les neutrons rapides, sont assez mal connus. Il en est de même pour les distributions en masse des fragments de fission. Ces données sont nécessaires pour comparer les modes de production des noyaux riches en neutrons et choisir la réaction la plus adaptée pour produire les faisceaux d'isotopes les plus intenses.

Comme nous avons mesuré de manière indépendante les productions des isotopes de Rb et Cs et leurs efficacités de relâchement, nous pouvons en déduire les productions dans la cible de fission et ainsi obtenir des informations sur les rendements de fission relatifs des isotopes à partir d'une distribution énergétique de neutrons à 10 MeV. Le rendement de fission d'un isotope est relié aux productions dans la cible et le nombre de fission par l'expression suivante :

$$y(\%) = 100 \frac{\phi_c}{N_f} = \frac{100\phi}{N_f \varepsilon_r \varepsilon_{ion} \varepsilon_{tr}} \quad (\text{III.22})$$

Malheureusement le nombre de fission  $N_f$ , l'efficacité d'ionisation  $\varepsilon_{ion}$  et l'efficacité de transport  $\varepsilon_{tr}$  n'ont pas été mesurés. Pour exprimer le produit  $N_f \varepsilon_{ion} \varepsilon_{tr}$  pour un élément donné, nous partirons d'un rendement de fission de référence donné par England et Rider pour un isotope (dans notre cas nous avons choisi le  $^{91}\text{Rb}$  et le  $^{138}\text{Cs}$ ). Ce rendement de référence est donné par :

$$y_{ref}(\%) = \frac{100\phi_{ref}}{N_f \varepsilon_{r-ref} \varepsilon_{ion} \varepsilon_{tr}} \quad (\text{III.23})$$

avec  $\phi_{ref}$  la production mesurée pour le  $^{91}\text{Rb}$  ou le  $^{138}\text{Cs}$ ,  $\varepsilon_{r-ref}$  l'efficacité de relâchement du  $^{91}\text{Rb}$  ou du  $^{138}\text{Cs}$ .

Si on extrait de l'équation III.23 le produit  $N_f \varepsilon_{ion} \varepsilon_{tr}$  et on le remplace dans l'équation III.22, on obtient alors l'expression du rendement de fission relatif par :

$$y(\%) = \frac{\phi \varepsilon_{r-ref} y_{ref}(\%)}{\varepsilon_r \phi_{ref}} \quad (\text{III.24})$$

Les courbes correspondantes sont présentées dans les figures III.19 et III.20. Elles représentent l'évolution des rendements de fission relatifs en fonction de la masse des isotopes du Cs et du Rb. L'étude de ces courbes montre un accord avec les rendements de

fission donnés par England et Rider, en effet les distributions isotopiques du Rb et du Cs que nous avons mesurées pour une énergie de neutrons rapides de 10 MeV ont la même allure générale que celles données par England et Rider. Les maximums des courbes se situent au voisinage de 90 pour le Rb et 140 pour le Cs, puis elles décroissent au fur et à mesure que la masse du noyau augmente. Cependant on observe un certain désaccord pour les masses 88 et 89. Ce désaccord est probablement dû au problème que nous avons déjà relevé dans la détermination des productions de  $^{88}\text{Rb}$  et  $^{99}\text{Rb}$ .

Nos mesures de rendements de fission relatifs ont l'avantage d'avoir des incertitudes meilleures que celles obtenues par England et Rider. De plus nos mesures offrent pour la première fois une détermination du rendement cumulatif relatif pour les isotopes  $^{147}\text{Cs}$  et  $^{99}\text{Rb}$ .

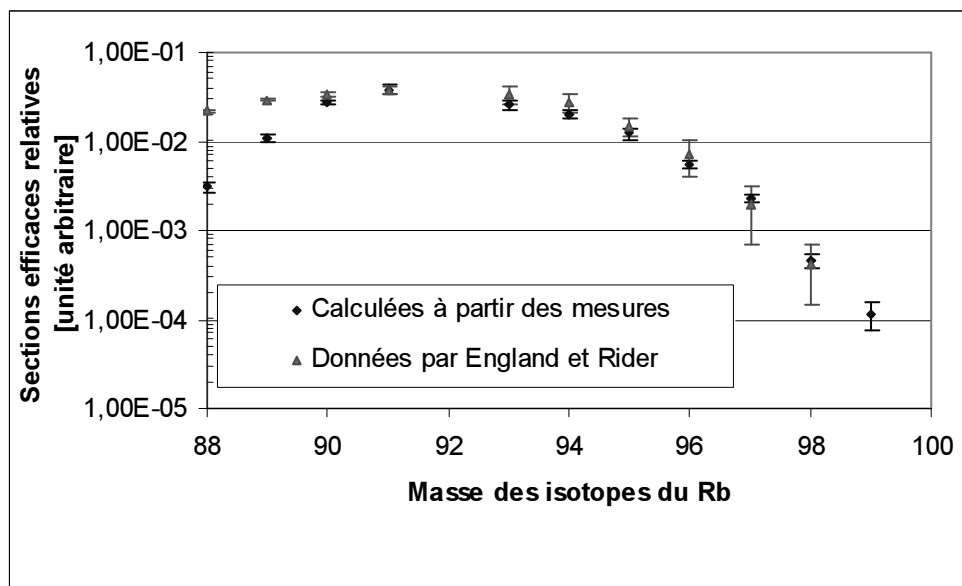


Figure III.19 : Comparaison des rendements de fission relatifs des isotopes de Rb mesurés avec des neutrons de 10 MeV à ceux donnés à 14.7 MeV par England et Rider.

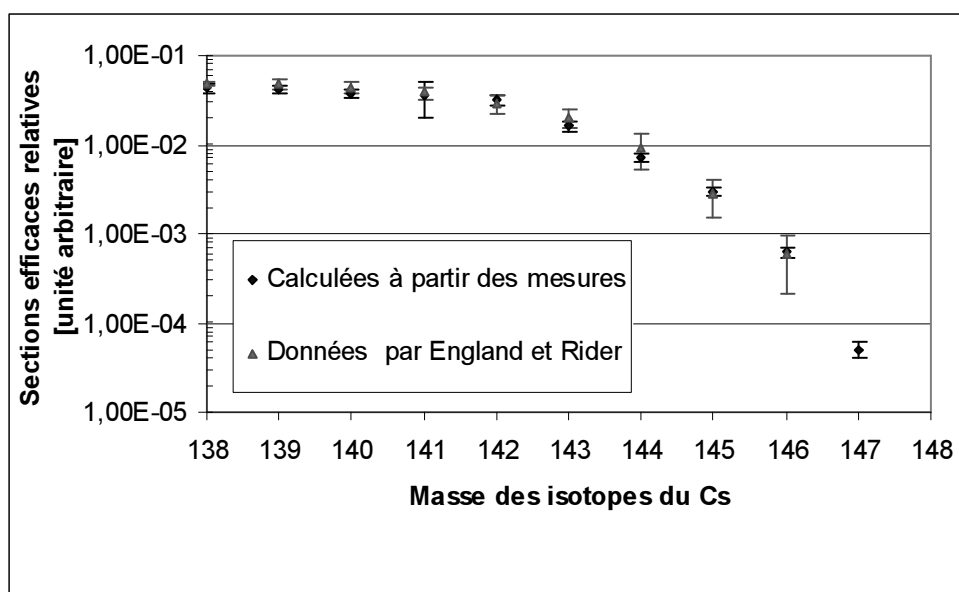


Figure III.20 : Comparaison des rendements de fission relatifs des isotopes du Cs mesurés avec des neutrons de 10 MeV à ceux donnés à 14.7 MeV par England et Rider.

### III.6 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié la production et le relâchement des isotopes de Rb et Cs par une cible de carbure d'uranium associée à une source d'ions à ionisation de surface. L'ensemble cible source d'ions est une partie essentielle dans les travaux de recherche et développement concernant le développement des faisceaux radioactifs riches en neutrons obtenus par la méthode ISOL. Les données obtenues au cours de notre travail (production, temps de relâchement, et les rendements de fission cumulatifs) vont être utilisés pour effectuer une comparaison entre les deux modes de productions suivants : fission induite par neutrons rapides ou particules chargées de haute énergie [Kös 03] et seront très utiles pour la définition des installations de seconde génération comme SPIRAL II. Elles permettront aussi d'élaborer des estimations aussi fiables que possible pour les intensités de faisceaux très riches en neutrons, envisageables avec ces futures installations.

La limite de détection des neutrons retardés émis par les noyaux a été conditionnée par le bruit de fond mesuré par le détecteur de neutrons. Dans cette expérience, avec un faisceau de deutons de seulement 1  $\mu$ A, ce bruit de fond a été de 200 n/min. Pour augmenter le rapport signal/bruit, il ne suffit pas d'augmenter l'intensité du faisceau de deutons il faut aussi limiter le bruit de fond en améliorant le blindage du détecteur de neutrons. Dans le projet EURISOL avec une puissance du faisceau incident de quelque mégawatts, le blindage de la salle de détection est d'une importance cruciale.

Pour confirmer ou infirmer les mesures des productions des isotopes  $^{88}\text{Rb}$  et  $^{89}\text{Rb}$ , nous envisageons de faire une expérience en ligne en utilisant des temps de comptage plus long de manière à obtenir une meilleure statistique qui permettra une évaluation précise des productions. D'autre part nous voudrions compléter les courbes de relâchements obtenues par la méthode indirecte avec les points correspondants aux isotopes du Rb et Cs de longue période afin d'obtenir les parties correspondantes à  $(T_R/T_{1/2} \leq 0.01)$ , c'est-à-dire mesurer les productions des isotopes de vie plus longue.

## Chapitre. IV. Développement d'une source laser pour la production des faisceaux d'ions séparés en ligne

### *IV.1 Intérêts de la source laser*

Différentes sources d'ions sont actuellement exploitées pour la production en ligne de faisceaux radioactifs. Par exemple, les sources ECR de type NANOGAN sont utilisées pour les faisceaux de SPIRAL (GANIL), les premiers faisceaux obtenus à ISAC (TRIUMF) proviennent d'une source à ionisation de surface, les sources à plasma de type FEBIAD sont fréquemment exploitées à ISOLDE (CERN) ainsi qu'à l'IPN d'Orsay. Toutes ont leurs avantages et inconvénients et il n'existe pas de source d'ions universelle dans ce domaine. Par exemple la source à ionisation de surface est très performante pour les éléments à faible potentiel d'ionisation ( $E_i < 6$  eV) notamment les alcalins. Les sources de type FEBIAD permettent d'ioniser les éléments à potentiel d'ionisation élevé. Leurs efficacités d'ionisation peuvent atteindre 50% pour les gaz rares au dessus de l'élément argon [Kös 98]. Lorsque ce type de source est connecté près de la cible, il permet d'ioniser aussi les éléments peu volatiles comme les éléments métalliques.

Actuellement, la poursuite des expériences en physique nécessite des faisceaux d'isotopes de plus en plus éloignés de la vallée de stabilité. En plus d'avoir une durée de vie relativement courte ces isotopes ont leurs sections efficaces de production bien plus faible que les autres produits de réaction proche de la vallée de stabilité. De plus, la séparation électromagnétique ne permet pas de séparer les isobares et une forte contamination isobarique peut rendre impossible l'étude ou l'utilisation des faisceaux d'isotopes loin de la vallée de stabilité. Dans ce contexte, le développement d'une source d'ions laser offre l'occasion de répondre efficacement aux besoins de produire des faisceaux d'isotopes très purs. Utilisant un processus de photo-ionisation résonante basé sur les caractères quantiques des niveaux d'énergie atomique accessibles, la source d'ions laser permet de produire les faisceaux d'ions les plus purs pour la plupart des éléments. Aujourd'hui à ISOLDE au CERN, 20 éléments sont systématiquement produits par cette technique appelée RILIS (Resonance Ionization Laser Ion Source). 12 autres éléments ont vu leurs schémas d'ionisation développés avec

succès [Bla 03a]. En plus de la pureté chimique du faisceau produit, la source laser a pour majeure partie des éléments du tableau périodique, une efficacité d'ionisation comparable aux sources classiques. Cette efficacité peut atteindre 20% par l'utilisation d'un laser à fréquence de répétition de 10 kHz. La méthode RILIS pour produire les faisceaux d'ions radioactifs est aussi un outil utilisé par les installations actuelles comme celles de IRIS à Gatchina, TIARA (Takazaki) et IMP (Lanzhou) [Kös 02]. Elle est aussi envisagée pour les installations de seconde génération comme celle de EURISOL et SPIRAL-2. Elle présente aussi l'avantage comme la source à ionisation de surface de fonctionner dans des conditions d'irradiation très élevées. De plus, la source laser offre la possibilité de séparer des isomères en exploitant leurs différentes structures hyperfines [Kös 00]. Le mode d'ionisation laser favorise la production d'un faisceau de faible émittance. En raison de types de laser utilisés, les faisceaux d'ions radioactifs produits sont pulsés. Ils peuvent être groupés sous formes des pulses de largeur de 10 ns afin d'obtenir un courant d'ions élevé utile pour les injecter dans des accélérateurs pour une post-accélération ou dans des trappes pour les refroidir [Klu 85].

Afin de mettre en œuvre la source laser à l'IPN d'Orsay pour le projet ALTO, nous avons entrepris des recherches et développements auprès d'un séparateur d'isotopes hors ligne (SIHL). Notre objectif en une première étape a été de réaliser un système laser permettant d'ioniser l'étain stable. Cette R&D sur un élément stable permet de déterminer les conditions optimales pour une exploitation en ligne auprès du séparateur PARRNe 2. Dans ce chapitre nous allons commencer par une étude de l'ionisation résonante. A partir de cette étude, nous allons caractériser la potentialité de la méthode RILIS pour produire les faisceaux d'ions. Ensuite nous présenterons le prototype de la source développée afin de mesurer l'efficacité d'ionisation d'un flux de vapeur de Sn confiné dans un tube par un laser ayant une fréquence de répétition de 30 Hz. Finalement nous terminerons ce chapitre par la caractérisation optique du faisceau d'ions de  $\text{Sn}^+$  produit par la source laser par la mesure préliminaire de son émittance.

## ***IV.2 Etude de l'ionisation résonante***

Plusieurs schémas d'ionisation résonante peuvent être utilisés pour un même élément [Hur 79]. Ils se différencient par le nombre de transitions et le flux de photons nécessaires pour atteindre la saturation des niveaux excités et les continuums d'ionisation.

La figure IV.1 présente un schéma d'ionisation à deux étapes : l'étape d'excitation et l'étape d'ionisation mais d'autres schémas d'ionisation peuvent être utilisés à trois étapes. Ce dernier a l'avantage de permettre une sélectivité chimique beaucoup plus importante que celui utilisant deux étapes. En effet, grâce à la division de l'excitation résonante en deux étapes, nous pouvons atteindre les niveaux excités sans avoir besoin des faisceaux lasers de longueur d'onde dans l'ultraviolet pour l'ionisation qui peuvent affecter la sélectivité chimique par les ionisations accidentelles induites. L'étape d'ionisation est réalisée par l'utilisation d'un troisième photon issu par exemple d'un laser à colorant. Nous verrons dans ce qui suit que



l'étape d'excitation nécessite toujours un flux très faible par rapport à l'étape d'ionisation. Le schéma d'ionisation à trois photons dont deux sont résonants est toujours employé à ISOLDE au CERN [Fed 00]. Les références [Sal 90], [Sal 92], [Sal 94] donnent différents schémas d'ionisation possibles pour quelques éléments. Le choix d'un schéma d'ionisation optimal pour un élément donné de la table périodique dépend donc :

Des caractéristiques de l'atome

- Le potentiel d'ionisation de l'atome
- L'énergie des niveaux excités
- Les caractéristiques quantiques des niveaux accessibles (parité, transition optique permise)

Des caractéristiques du laser

- Les longueurs d'onde disponibles
- La durée de pulse
- La puissance par pulse
- Les qualités optiques du faisceau laser (résolution, distribution spectrale...)
- Les polarisations des faisceaux lasers

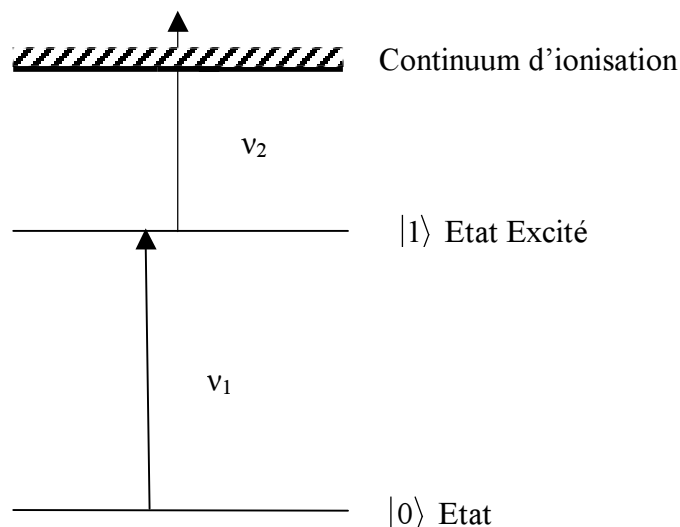


Figure IV.1 : Schéma de principe de l'ionisation à deux photons dont une est résonante.

Nous proposons dans ce qui suit une étude détaillée du mécanisme d'ionisation à deux photons dont un est résonant. Cette étude nous permettra d'estimer la puissance nécessaire pour atteindre la saturation de l'étape d'excitation et d'ionisation. Nous avons appliqué le schéma d'ionisation à deux photons pour l'étain stable pour des questions de simplicité et de faisabilité.

### IV.2.1 L'ionisation résonante à deux photons

Cette photoionisation sélective de l'atome commence par une étape d'excitation qui s'effectue par l'absorption photonique de fréquence  $\nu_1$ . La deuxième étape étant l'ionisation par absorption d'un photon de fréquence  $\nu_2$ .

#### Etape d'excitation

La transition d'excitation de l'état fondamental  $|0\rangle$  à l'état excité  $|1\rangle$  n'est permise que lorsqu'on obéit aux règles de sélection dipolaires électriques données par :

$\Delta J = 0, \pm 1$  sauf la transition  $J = 0 \rightarrow J' = 0$  est interdite, avec  $J$  le moment cinétique totale.

$\pi_0, \pi_1 = -1$ , avec  $\pi_0, \pi_1$  les parités respectives des états  $|0\rangle, |1\rangle$ .

Si la transition de  $|0\rangle$  vers  $|1\rangle$  est permise alors il existe plusieurs processus qui interviennent dans cette étape d'excitation (Fig. IV.2). Ces processus sont :

- Le peuplement de l'état excité par absorption d'un flux de photons d'énergie  $h\nu_1$ . Le taux de cette absorption est donné par le produit du flux de photons ( $F$ ) issus du laser par la section efficace d'absorption  $\sigma_{01}$ . La valeur de la section efficace d'absorption dépend de l'énergie des photons.
- La désexcitation des atomes se trouvant à l'état  $|1\rangle$  vers  $|0\rangle$ . Sa probabilité est caractérisée par une constante  $A_{10}$  liée à la durée de vie de l'état excité.
- L'émission stimulée de  $|1\rangle$  vers  $|0\rangle$ . Son taux est le produit de la section efficace de d'émission stimulée  $\sigma_{10}$  par le flux de photons.
- Les désexcitations vers d'autres états que celui du niveau fondamental. Elles sont caractérisées par un taux de fuite  $1/\tau$ .

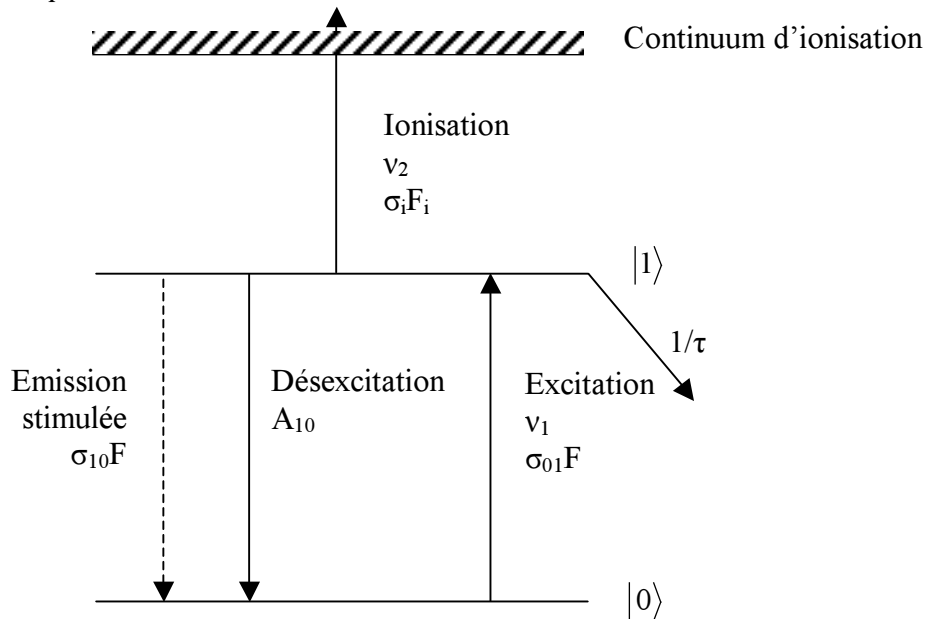


Figure IV.2 : Mécanismes intervenant dans l'étape de transition de  $|0\rangle$  vers  $|1\rangle$ .

Lorsque le flux de photons interagissant avec la densité des atomes dans l'état fondamental est faible alors la densité des atomes dans l'état excité est proportionnelle au flux de photons absorbés. Cependant au fur et à mesure qu'on augmente le flux de photons, on fait croître un processus de désexcitation qui entre en compétition avec le processus d'excitation jusqu'à atteindre l'équilibre entre ces deux processus. On perd alors la relation de linéarité. Cet équilibre n'est réalisé que lorsqu'on satisfait à la condition suivante :

$$F \gg \frac{1}{\tau \sigma_{01}} \quad (\text{IV.1})$$

Comme le taux de fuite  $1/\tau$  non radiatif est de l'ordre de  $10^8 \text{ s}^{-1}$  et la section efficace d'absorption  $\sigma_0$  est de  $10^{-11}$  à  $10^{-14} \text{ cm}^2$  [Dez 90], pour atteindre l'équilibre appelé aussi la saturation, il faudrait que :

$$F \gg 10^{22} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1} \quad (\text{IV.2})$$

Pour l'étain nous avons choisi la transition  $^3\text{P}_0$  vers  $^3\text{P}_1$  (Fig. IV.3) pour l'étape d'excitation. Elle correspond à une longueur d'onde de 286.3 nm. L'intensité du laser qui permet d'atteindre la saturation doit être :

$$I \gg 6.9 \cdot 10^3 \text{ W cm}^{-2} \quad (\text{IV.3})$$

Une telle intensité laser en particulier dans la gamme de longueur d'onde de l'ultraviolet ne peut être obtenue qu'avec un laser pulsé. Dans notre cas où l'impulsion laser est de largeur 8 ns et que le flux a un diamètre de 0.3 cm, alors l'énergie par impulsion nécessaire à la saturation doit satisfaire la relation suivante :

$$E \gg 3.89 \text{ } \mu\text{J/impulsion} \quad (\text{IV.4})$$

Cette relation va conditionner le choix de l'énergie par pulse du laser que nous allons utiliser pour l'étape d'excitation de l'étain.

### **Etape d'ionisation**

Les atomes étant excités, l'absorption de photons laser d'énergie  $h\nu_2$  par les électrons leur permet de passer au continuum d'ionisation. La section efficace d'ionisation est de  $10^{-17}$  à  $10^{-19} \text{ cm}^2$  [Let 87]. Elle est beaucoup plus faible que la section efficace d'absorption. Par conséquent atteindre la saturation du continuum d'ionisation nécessite une intensité laser beaucoup plus importante que celle de l'étape d'excitation.

Sous l'action du laser d'ionisation la variation de la densité d'atomes excités à la saturation se traduit par l'équation suivante :

$$\frac{dn_1(t)}{dt} = -\frac{g_1}{g_1 + g_0}(\sigma_i F_i + 1/\tau)n_1(t) \quad (\text{IV.5})$$

Avec  $F_i$  le flux de photons du laser d'ionisation,  $g_0$  et  $g_1$  les poids statistiques respectifs des niveaux excité et fondamental.

Le rapport  $g_1/(g_1+g_0)$  est la probabilité pour que les atomes parviennent sur l'état excité.

La solution de l'équation IV.5 est donnée par :

$$n_1(t) = n_1(0) \exp\left[-\frac{g_1}{g_1 + g_0}(\sigma_i F_i + 1/\tau)t\right] \quad (\text{IV.6})$$

$n_1(0)$  est la densité à l'équilibre des atomes dans l'état excité. Elle est reliée à la densité  $n_0(0)$  des atomes dans l'état fondamental par  $n_1(0)/n_0(0) = g_1/g_0$ .

En considérant une impulsion laser de durée  $\tau_2$  possédant un flux  $F_i$ , on déduit la densité  $n_c$  d'atomes dans l'état du continuum d'ionisation à partir de  $n_1(t)$  selon l'expression suivante :

$$n_c(t) = \int_0^{\tau_2} \sigma_i F_i n_1(t) dt = \frac{\sigma_i F_i n}{(\sigma_i F_i + 1/\tau)} (1 - \exp[-\frac{g_1}{g_1 + g_0}(\sigma_i F_i + 1/\tau)\tau_2]) \quad (\text{IV.7})$$

avec  $n = n_0(0) + n_1(0)$

Quand la densité des atomes dans l'état du continuum est égale à  $n$ , on peut donc déduire les deux conditions pour saturer l'ionisation. Elles s'écrivent selon :

$$F_i \gg \frac{1}{\tau \sigma_i} \quad (\text{IV.8})$$

$$F_i \tau_2 \gg \frac{g_1 + g_0}{g_1 \sigma_i} \quad (\text{IV.9})$$

Les équations IV.8 et IV.9 sont dites respectivement les conditions du flux et de fluence.

L'étape d'ionisation de l'étain sera effectuée avec un faisceau laser de longueur d'onde 410 nm. Pour atteindre la saturation de cette étape on doit satisfaire aux relations suivantes :

$$F_i \gg 10^{27} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1} \quad (\text{IV.10})$$

$$F_i \tau_2 \gg 3 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-2} \quad (\text{IV.11})$$

L'intensité laser nécessaire à la saturation doit être :

$$I \gg 4.84 \cdot 10^8 \text{ W/cm}^2 \quad (\text{IV.12})$$

Cette haute intensité ne peut être obtenue qu'avec un laser à colorant pulsé. Dans le cas où le faisceau laser est composé de pulses de largeur 8 ns et possède le même rayon que celui du faisceau d'excitation, l'énergie par impulsion doit obéir à la relation suivante :

$$E \gg 2.73 \text{ mJ/impulsion} \quad (\text{IV.13})$$

Les relations IV.13 et IV.11 conditionnent le choix des caractéristiques du laser de l'étape d'ionisation des atomes de Sn afin d'avoir une efficacité d'ionisation optimale.

### IV.2.2 Schéma d'ionisation de Sn

Comme le montre la figure IV.3, le Sn est un élément pour lequel on peut utiliser plusieurs schémas d'ionisations résonantes. Parmi ceux-ci nous avons choisi l'ionisation résonante à deux photons avec la longueur d'onde du premier étage d'excitation est à 286.3 nm. Ce premier photon a une énergie supérieure à la moitié du potentiel d'ionisation de Sn ( $E_i = 7.34 \text{ eV}$ ). L'absorption d'un second photon à 410 nm permet alors à l'atome de passer à l'état du continuum d'ionisation.

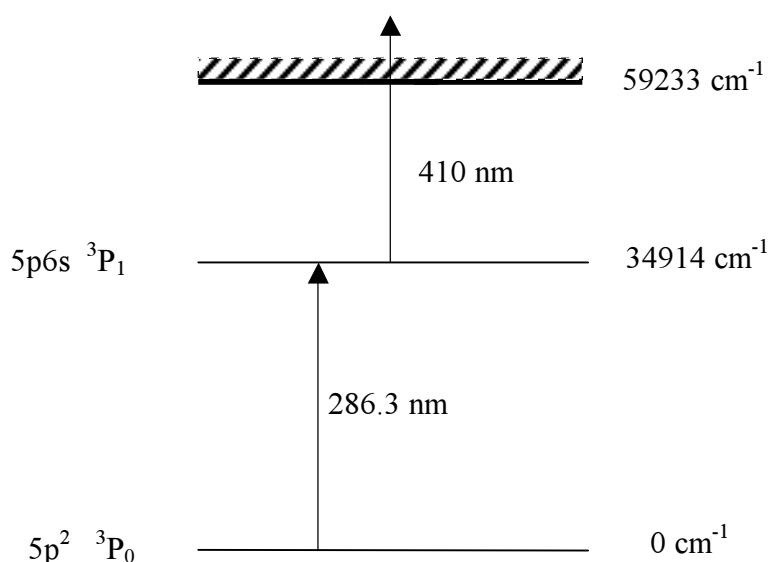


Figure IV.3 : Schéma utilisé pour ioniser l'étain.

### IV.3 Calcul de l'efficacité d'ionisation

L'ionisation résonante des atomes peut être effectuée selon plusieurs configurations géométriques dont les plus simples sont données dans la référence [Mis 93]. Parmi ces géométries nous avons choisi celle qui donne le maximum du volume de recouvrement laser-atomes. Elle correspond comme le montre la figure IV.4 à la géométrie où le diamètre du tube est égal à celui du laser. D'autre part, l'utilisation d'un tube cylindrique de longueur  $L$  a l'avantage de confiner les atomes diffusés pendant un certain temps afin de favoriser leurs probabilités d'interaction avec les faisceaux lasers d'excitation et d'ionisation.

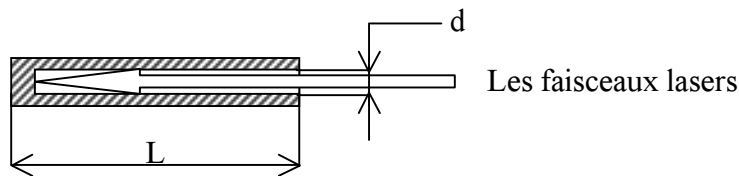


Figure IV.4 : Photoionisation des atomes avec le faisceau laser dans le tube.

L'efficacité d'ionisation totale dans le tube d'ionisation est donnée dans la référence [Fed 00]. Son expression est la suivante :

$$\eta_{total} = \frac{\eta_{photo-ion} f}{\eta_{photo-ion} f + 2/3(d/L^2)\bar{v}} \quad (IV.14)$$

Avec  $f$  la fréquence de répétition du laser.

$\eta_{photo-ion}$  est la probabilité de photoionisation par pulse. Elle est typiquement de quelque dizaine de pourcent si les atomes sont ionisés à partir de leurs états autoionisants.

$\bar{v}$  est la vitesse thermique moyenne des atomes dans le tube porté à la température  $T$ . Elle est donnée par  $(8kT/\pi m)^{1/2}$  avec  $k$  constante de Boltzmann et  $m$  masse de l'atome.

L'équation IV.14 montre que l'efficacité d'ionisation est une fonction croissante de la longueur du tube. Cependant, si on dépasse une longueur critique  $L_c$ , l'efficacité d'ionisation totale calculée est supérieure à celle que l'on attend expérimentalement. Cette différence est due à la distorsion des performances d'extraction des ions du tube. En effet, si le tube est long, le temps d'effusion des atomes ionisés vers la sortie d'extraction du tube est lent. En ce qui concerne le diamètre du tube, l'idéal est qu'il soit aussi petit que possible. Cependant ceci impose deux problèmes : une difficulté de focalisation du faisceau laser dans le tube et une

altération de la sélectivité d'ionisation laser à cause du bruit de fond généré par les atomes ionisés dans la cavité chaude [Lat 75].

En conclusion pour optimiser l'efficacité d'ionisation au moyen des dimensions du tube, il faut que sa longueur égale au moins 10 fois le libre parcours moyen des atomes (c'est-à-dire  $L = 10 \lambda$ ) afin de minimiser le passage direct des atomes sans interaction avec la surface du tube. Cette longueur est requise aussi par la tenue thermique du matériau dans les conditions de température de chauffage entre 1000 et 2000 °C. En effet, le tube ne doit pas se déformer dans cette gamme de chauffage. Comme le diamètre du tube adapté pour la focalisation du laser est de 3 mm, nous avons fixé cette longueur à 30 mm.

Avec un laser de fréquence de répétition de 10 kHz ayant une bonne résolution en énergie (afin d'utiliser les états autoionisants de l'atome), le calcul de l'efficacité d'ionisation de Sn dans le tube porté à une température de 2000°C donne environ 41% (avec  $\eta_{\text{photo-ion}} = 10\%$  [Kös 99]). Cependant si on utilise des états non autoionisants de l'atome de Sn ( $\eta_{\text{photo-ion}} = 2.97 \cdot 10^{-5}$  déduite de la référence [Mis 93]) l'efficacité d'ionisation est de l'ordre de  $2.8 \cdot 10^{-2}\%$ . La comparaison du calcul des efficacités d'ionisation par les deux méthodes montre que l'utilisation des états autoionisants de l'atome est bien plus avantageuse.

Le laser utilisé dans notre expérience de recherche et développement a une fréquence de répétition de 30 Hz. Son efficacité d'ionisation dépend de la vitesse thermique des atomes. Si le tube d'ionisation est porté à une température de 1100 °C, alors l'efficacité d'ionisation maximale de l'étain est de  $2 \cdot 10^{-6}$ . Nous justifierons plus loin le choix de cette température de chauffage.

#### ***IV.4 Développement d'un prototype***

Pour mettre en œuvre cette source nous avons conçu un prototype (Fig. IV.5) installé sur le séparateur d'isotopes hors ligne (Fig. IV.7). Le principe de fonctionnement de la source consiste à évaporer de l'étain stable dans un four. La vapeur d'étain passe dans le tube d'ionisation où s'effectue le recouvrement des faisceaux lasers avec la vapeur de Sn. Les ions ainsi produits sont accélérés par une différence de potentiel de 30 kV appliquée entre la source et l'électrode d'extraction. Ils sont ensuite transportés pour la séparation électromagnétique puis sont détectés par des galettes de microcanaux. Celles-ci délivrent un spectre constitué d'une succession de pics qui caractérisent tous les isotopes stables de l'étain.

Etant donné la faible intensité du faisceau d'ions d'étain produit par photoionisation, il était difficile d'optimiser les paramètres d'extraction et de transport le long du séparateur. Nous avons conçu la source de sorte à disposer d'un faisceau d'ions de référence suffisamment intense pour les réglages d'optique ionique mais pas trop pour ne pas induire de pollution du séparateur. Nous avons donc développé une source pouvant fournir un faisceau

de césium de moins de  $1\mu\text{A}$  par ionisation de surface. L'ionisation de surface s'effectue dans le même tube que l'ionisation par la source laser.

Parmi tous les éléments du tableau périodique, le Cs présente le potentiel d'ionisation ( $E_i = 3.89\text{ eV}$ ) le plus faible par conséquent nous pouvons produire un faisceau assez intense, tout en limitant la pollution du tube d'ionisation.

Lors de la conception de la source, il est important que les matériaux de la source portés à haute température soient inertes chimiquement vis-à-vis des vapeurs de Cs et Sn. Ceci afin d'éviter toutes les interactions chimiques limitant la durée d'exploitation de la source en ligne. Dans le chapitre précédent nous avons vu que les éléments réfractaires purs ont deux propriétés importantes : un point de fusion élevé qui peut dépasser  $2000\text{ }^\circ\text{C}$ , un travail de sortie ( $> 4\text{ eV}$ ) quasi constant sur une large gamme de température de fonctionnement de la source. Ces réfractaires constituent les matériaux principaux des sources à haute température. Notre choix s'est porté sur le tantale comme matériau du corps de la source. En plus de ses bonnes qualités physico-chimiques, le tantale présente des bonnes propriétés mécaniques qui lui permettent d'être facilement usiné et soudé. En ce qui concerne le tube d'ionisation, différents matériaux peuvent être utilisés comme notamment le Ta, le Nb et le TaC. En se basant sur les travaux présentés dans la référence [Mis 93], le TaC permet une meilleure sélectivité chimique pour la source laser. Cet avantage est dû à son faible travail de sortie qui est de l'ordre de  $2.2\text{ eV}$  [Kös 01], qui limite le courant d'ions produit par ionisation de surface. Pour nos développements le TaC présente néanmoins deux propriétés indésirables : une durée de vie faible à une température de chauffage élevée, un travail de sortie inférieur au potentiel d'ionisation du césium.

Pour le Nb, bien qu'il permette d'ioniser le césium, sa température de fusion est plus faible par rapport au Ta, elle est de l'ordre de  $2740^\circ\text{C}$ . C'est pour cela que nous avons préféré le Ta comme matériau du tube d'ionisation.

Le schéma du prototype de la source avec ses caractéristiques techniques sont donnés respectivement par la Figure IV.5 et le tableau IV.1.



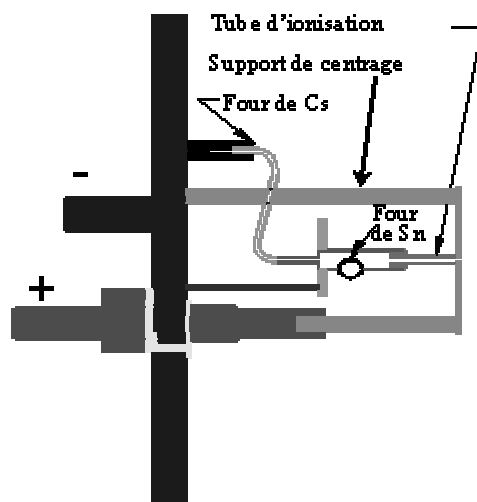


Figure IV.5 : Corps de la source d'ions montée sur le séparateur.

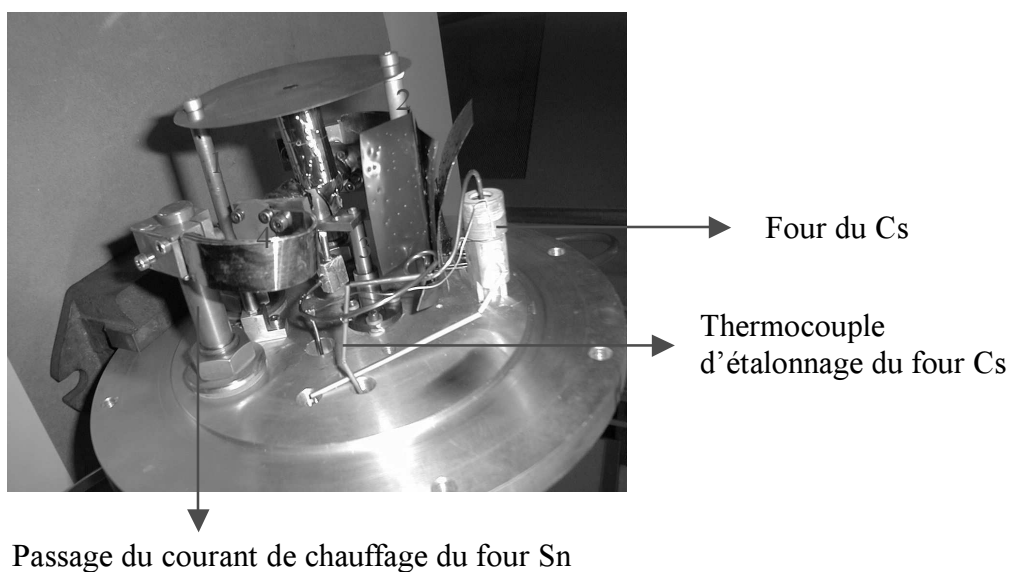


Figure IV.6 : Photo du prototype de la source utilisée.

	Four étain	Tube de transfert	Tube d'ionisation
Diamètre intérieur (mm)	10	10	3
Diamètre extérieur (mm)	11	11	5
Longueur (mm)	71	38	30
Alimentation de chauffage (A /V)	600/10		

Tableau IV.1 Caractéristiques techniques de la source laser.

### **Le tube d'ionisation**

Il est enfoncé dans un tube de transfert soudé sur le four d'étain et relié à un four de césium. Grâce à cette liaison les atomes évaporés sont facilement acheminés pour être confinés dans le tube d'ionisation. Comme il est indiqué sur la figure IV.6, le centrage du tube d'ionisation dans sa bride est réalisé par trois tiges cylindriques dont deux sont directement fixées sur la bride. Etant donné que la troisième tige est un passage de retour du courant de chauffage du tube d'ionisation, elle est isolée électriquement de sa bride de fixation par des rondelles en céramique. Le chauffage de tube d'ionisation est effectué par une alimentation de courant qui peut fournir une puissance de 6 kW.

### **Le four de Sn**

Il se compose d'un tube cylindrique en Ta obturé d'un côté par une bague en nitrure de bore. L'étanchéité entre la bague et la surface du four est assurée par une pâte en zirconium bien adaptée au fonctionnement à haute température et au vide. Le chargement du four avec l'étain se fait dans un container en Ta placé dans son milieu. Puis à l'aide d'une bague en nitrure de bore retirable par un filetage on ferme l'extrémité de chargement. La longueur de cette bague est choisie de façon à réaliser le centrage du container d'étain dans son four.

Deux bagues en graphite sont aussi utilisées comme couvercle du four afin d'avoir une deuxième barrière d'étanchéité et de contrôler la fuite des atomes. Le chauffage du four de Sn est assuré par conduction thermique lors de chauffage du tube d'ionisation et par une alimentation du courant qui sera relié à ses passages de courant.

### **Four de Cs**

Il a la forme d'un creuset en nitrure de bore monté sur un support en dural en contact avec la bride contenant le corps de source. Cet ensemble est placé plus loin du centre de la flasque de la source afin de l'éloigner de ses parties chaudes. Elles induisent un chauffage élevé du four qui se traduit par évaporation rapide d'iodure de césium contenu dans le creuset. Ce four est chauffé par l'intermédiaire d'un tube en Ta relié au tube de transfert. Le creuset est enroulé par un fil en tungstène relié à une alimentation de courant pour permettre un chauffage supplémentaire.

### **Refroidissement de la source**

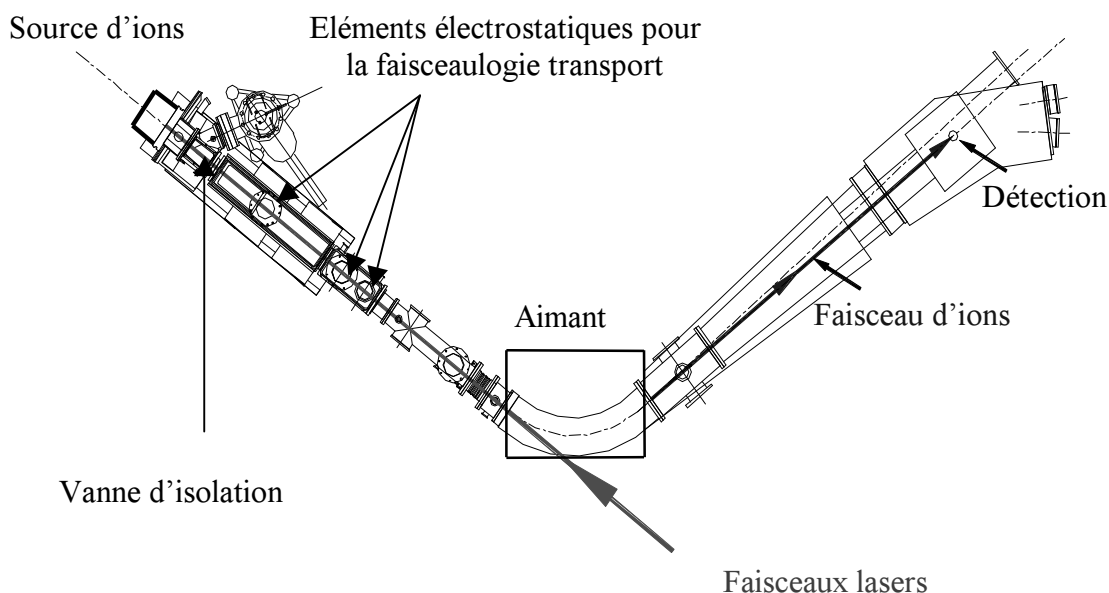
La température de fonctionnement de la source se situe entre 1000 et 2000 °C. Elle pourrait induire un échauffement de la bride de la source par rayonnement. La température supportée par les joints et les isolants de la bride est limitée à 100 °C. Il est donc nécessaire de refroidir la bride à l'eau et d'utiliser des écrans thermiques. Le tube d'ionisation et le four

d'étain ont été couverts par des écrans en Ta. Quant à la bride et les passages du courant nous les avons dotés d'un usinage pour la circulation de l'eau.

Le choix du matériau de la source, les joints de passage de vide au niveau des connecteurs du courant de chauffage et la pâte d'étanchéité ont permis malgré les entrées d'air répétées durant les tests dans le séparateur d'obtenir une pression de  $10^{-5}$  à  $10^{-6}$  mbar. Ceci est suffisant pour tenir la source à 30 kV pour l'extraction des ions.

## IV.5 Dispositif expérimental

Les développements de la source laser ont été réalisés sur le séparateur d'isotopes hors ligne SIHL. Ce séparateur représenté sur la figure IV.7 est entièrement dédié à la R&D d'ensembles cible-sources d'ions pour la séparation d'isotopes en ligne. En particulier, il permet de valider les prototypes mis au point pour le séparateur PARRNe 2.



*Figure IV.7 : Le séparateur d'isotopes (S.I.H.L) utilisé pour mettre en oeuvre la source d'ions laser. Selon le type de source testé, les éléments électrostatiques utilisés peuvent être soit des quadripôles, soit des lentilles cylindriques.*

Le faisceau d'ions d'étain extrait de la source est transporté par un triplet de quadripôles électrostatiques jusqu'à l'aimant de séparation. Cet aimant a un rayon de courbure de 0,8 m et une déflexion de 75°. Il permet de séparer les faisceaux d'isotopes avec une résolution massique de 2000. Le faisceau d'isotopes sélectionné au plan focal est refocalisé par un doublet de quadripôles électrostatiques sur le système de détection. Ce dernier est constitué soit par des galettes de microcanaux escamotables dans le cas de faisceau peu

intense, soit par une cage de Faraday escamotable dans le cas de faisceau intense comme le  $\text{Cs}^+$  par exemple ( pour le réglage du séparateur).

En ce qui concerne les deux faisceaux lasers, ils sont transportés vers le tube d'ionisation sur une distance de 15 m à l'aide de quatre doublets de miroirs diélectriques montés sur deux piliers. Le premier pilier est placé dans la salle de production des lasers alors que le deuxième pilier est fixé sur l'amant du séparateur. Les deux faisceaux laser sont transmis axialement dans le séparateur à travers un hublot en silice d'un diamètre de 38 mm et d'épaisseur 6 mm. Ce hublot est de bonne résistance mécanique, permettant un vide à une pression de  $10^{-6}$  mbar. Son coefficient de transmission dans l'ultraviolet et le bleu est presque de 100%. Nous avons vérifié sur le séparateur porté à la pression atmosphérique que le hublot n'a pas une influence sur la forme géométrique du faisceau. Cependant à cause de la divergence angulaire des faisceaux laser, si on laissait ces faisceaux se propager sans focalisation ils auraient un diamètre supérieur au diamètre du tube d'ionisation au point d'interaction. Pour corriger cela nous avons utilisé trois lentilles convergentes de distance focale de 3 m pour la focalisation du faisceau d'ionisation, et deux lentilles convergentes de distance focale de 3 m pour focaliser le faisceau laser d'excitation.

Pour contrôler l'alignement optique des deux faisceaux lasers avec le tube d'ionisation de la source nous avons utilisé un écran fluorescent fixé sur la vanne d'isolation de la source d'ions et du séparateur (Fig. IV.7).

#### IV.5.1 Les galettes de microcanaux

C'est le système de détection des particules chargées le plus utilisé. Il se compose de deux galettes de microcanaux montées en chevron. Ces galettes sont constituées de plusieurs millions de canaux émissifs (CsI) d'électrons d'un diamètre standard de 18  $\mu\text{m}$  et dont chacun fonctionne en tant que multiplicateur d'électrons indépendant. Sur les faces de chaque galette un dépôt métallique de Ni-Cr a été effectué pour former des électrodes accélératrices d'électrons. L'interaction d'un faisceau d'ions de  $\text{Sn}^+$  avec la surface d'entrée de la galette AB (Fig. IV.8) génère des électrons multipliés dans les canaux et accélérés par la différence de potentiel de quelque kV appliquée entre les deux faces d'électrodes de la galette. Etant donné que le facteur de multiplication de chaque galette est de  $10^3$  à  $10^4$ , le gain total des deux galettes est de  $10^6$  à  $10^8$ . Pour assurer un bon fonctionnement du détecteur, il faudrait le faire dégazer à une pression de  $10^{-4}$  à  $10^{-6}$  mbar pendant 24 heures avant d'appliquer la tension d'alimentation. Ce dégazage a également l'avantage d'éviter le claquage de la tension appliqué aux bornes des électrodes. Ce claquage peut endommager les galettes et diminuer sa durée d'exploitation. Grâce à cet ensemble une impulsion d'électrons de largeur  $\Delta t$  sera recueillie, elle est caractéristique des ions (Fig. IV.9). Sa surface est proportionnelle au nombre d'ions détectés. Une calibration de la galette avec une lampe à vapeur de mercure (produisant beaucoup d'ions par rayonnement dans l'ultraviolet) a montré que chaque ion

déecté occupe 2 mVns à 1500 V d'alimentation et 4mVns à 1700 V. Pour déterminer le nombre d'ions total contenus dans un pulse pour une tension d'alimentation des galettes donnée, il suffit de déterminer le rapport de la surface nette du signal ( $V \Delta t$ ) par la surface qui peut occuper un ion. Grâce à ce système on peut déterminer le nombre d'ions détectés.

La détection des ions par ces galettes est déclenchée sur ces impulsions laser. Le temps de vol des ions est de 40  $\mu$ s. Il est important de souligner que les galettes de microcanaux ne permettent que la mesure de courant de faible intensité de quelques dixièmes de picoampères au maximum.

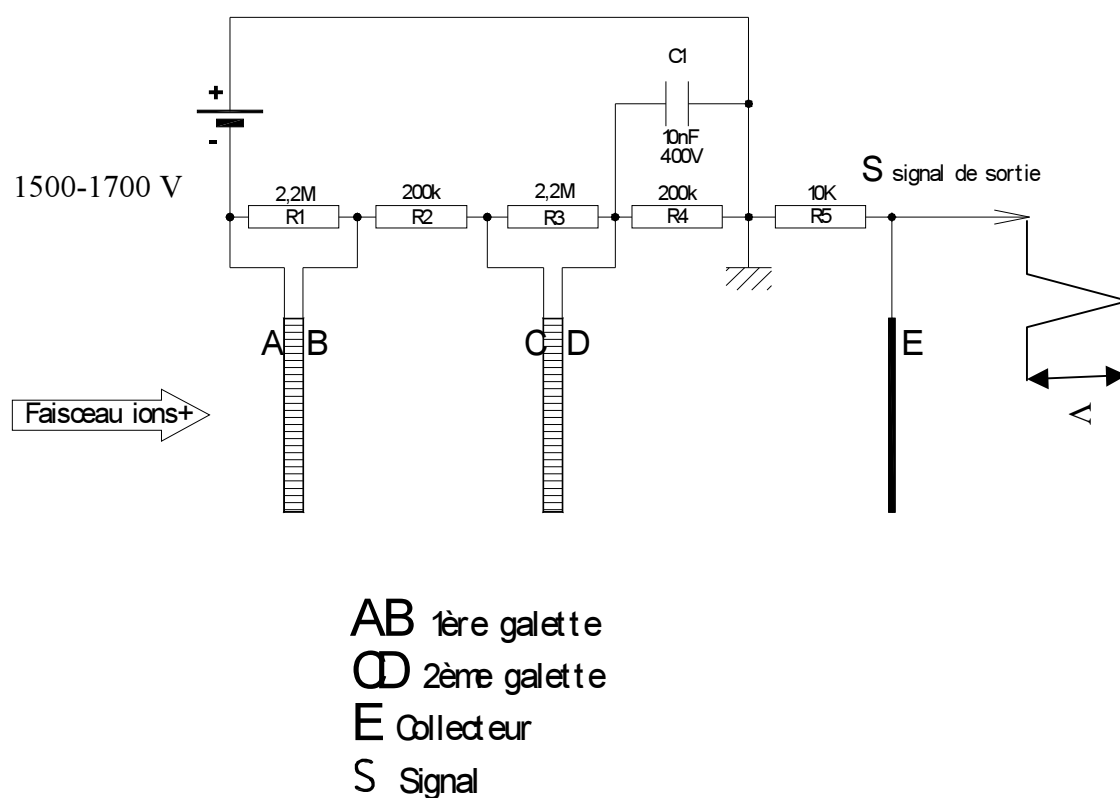


Figure IV.8 : Montage des galettes utilisées pour la détection des ions de  $\text{Sn}^+$ .

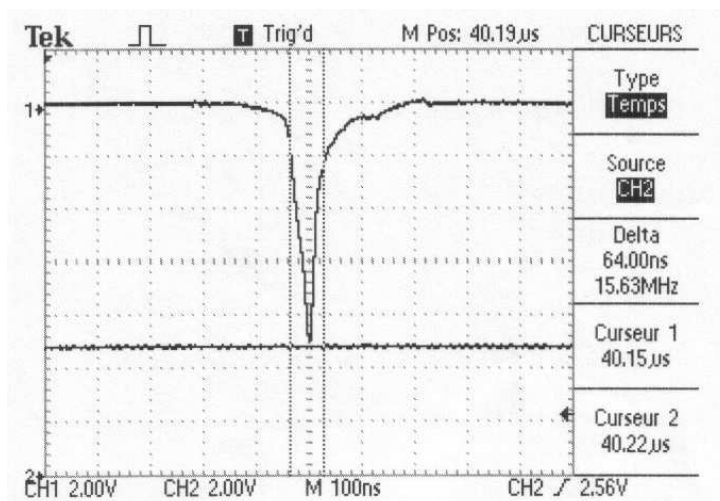


Figure IV.9 : Spectre de  $^{116}\text{Sn}$  obtenu par les galettes de microcanaux.

#### IV.5.2 Le système laser

L'ionisation de l'étain est réalisée par l'absorption de deux photons de longueur d'onde de 286.3 nm pour l'étape d'excitation et de 410 nm pour l'étape d'ionisation. Ces deux longueurs d'onde sont fournies par un système de lasers à colorant composé de deux oscillateurs pompés par un laser Nd-YAG de type Quanta-Ray. Le laser Nd-YAG fonctionne à une fréquence de répétition de 30 Hz. Il délivre un faisceau infrarouge à 1064 nm qui sera doublé à 532 nm et triplé à 355 nm par des cristaux non linéaires de type KDP. L'énergie des lasers obtenus est de 290 mJ/pulse pour le faisceau à 532 nm et 150 mJ/pulse pour celui à 355 nm. Leur largeur de pulse est respectivement de 16 et 8 ns.

Nous avons mis au point deux cavités laser utilisant des cellules à colorant et un réseau permettant de balayer une large gamme de longueur d'onde qui s'étale de l'ultraviolet jusqu'à l'infrarouge par simple changement de colorant et adaptation de l'optique associée (Fig. IV.10).

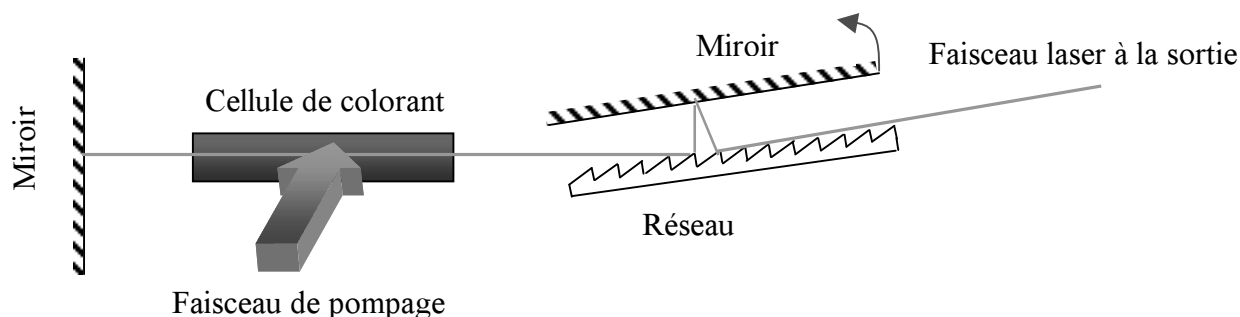


Figure IV.10 : Principe de la cavité laser utilisée pour le pompage du colorant avec le faisceau laser du YAG-Nd.

Pour la cellule du laser d'excitation, nous avons choisi le colorant Rhodamine 590 dissout dans du méthanol avec une concentration de 0.1 g/l. Le spectre de fluorescence de ce colorant s'étale de 567 à 602 nm. Son pompage avec le faisceau laser du YAG de longueur d'onde 532 nm permet d'obtenir un faisceau laser accordable de longueur d'onde autour de 570 nm (Fig. IV.11). Cette dernière utilisée pour le premier étage est doublée par un cristal non linéaire de type KDP. Nous obtenons en sortie un faisceau laser de 286.3 nm de longueur d'onde et de quelques dizaines de  $\mu\text{J/pulse}$  d'énergie. Cette énergie est largement suffisante pour saturer la transition d'excitation. La longueur d'onde est contrôlée par un lamdamètre de 90 MHz de résolution.

Pour la cellule du laser d'ionisation nous utilisons le colorant DPS dissout dans du dioxane 1-2 avec une concentration de 0.66 g/l. Le spectre de fluorescence de ce colorant s'étend de 397 nm à 415 nm. Son pompage avec le faisceau laser du YAG triplé de longueur d'onde 355 nm permet d'obtenir un faisceau laser de longueur d'onde accordable autour de 410 nm. Pour obtenir une puissance suffisante nécessaire pour l'étage d'ionisation, nous l'avons amplifié par passage dans une 2<sup>ème</sup> cellule à colorant utilisant le même colorant à 0.33 g/l de concentration et pompé par le faisceau laser du YAG triplé. On atteint ainsi une puissance maximale de 10 mJ/impulsion. Cette puissance diminue au fur et à mesure au transport du faisceau et reste finalement insuffisante pour saturer totalement la transition d'ionisation.

Ainsi que le montre la figure IV.11, il y a deux lignes de retard : ligne à retard optique 1 assurée par l'insertion de prismes, ligne à retard optique 2 assuré par deux miroirs. La première ligne est utilisée pour tenir compte des multi-passages dans la l'oscillateur 2 alors que la deuxième prend compte la durée de vie de l'état excité ( $10^{-8}$  s). Le faisceau d'ionisation arrive au niveau de la source en retard de  $10^{-8}$  s par rapport à celui de l'excitation.

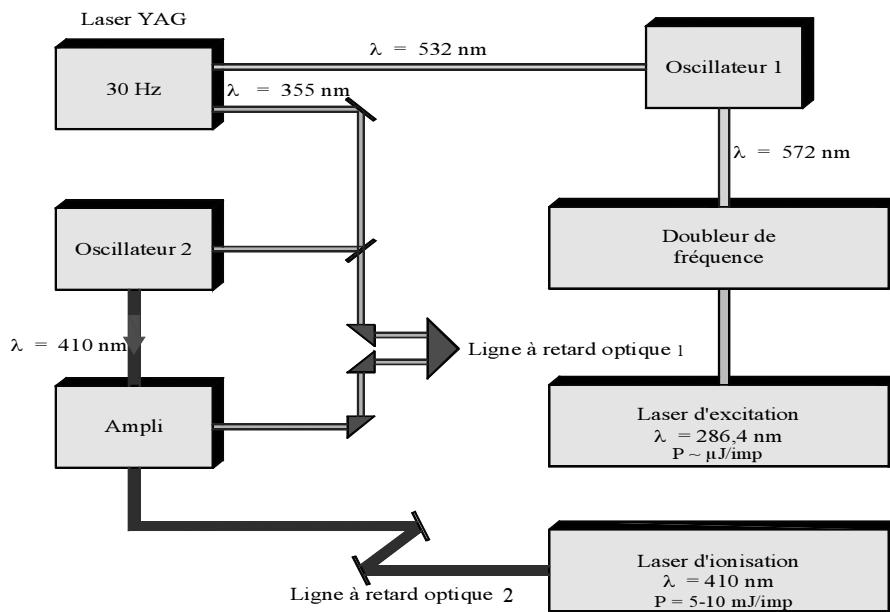


Figure IV.11: Le système des lasers utilisé pour l'ionisation de Sn.

#### IV.6 Production d'un faisceau de $\text{Cs}^+$

Les molécules d'iodures de césium évaporées dans leur four se dissocient en ions de  $\text{Cs}^+$  et  $\text{I}^-$  par interactions avec la surface du tube d'ionisation porté à une température comprise entre 1000 et 2000 °C. Comme nous voulons produire un faisceau d'ions de  $\text{Cs}^+$  de 1  $\mu\text{A}$  d'intensité maximale, il faut contrôler la vitesse d'évaporation d'ICs en suivant l'évolution de sa pression de vapeur en fonction de sa température. Cette pression de vapeur est limitée à la pression de fonctionnement du séparateur qui doit être inférieure à  $10^{-5}$  mbar. En dessous de cette pression, l'évolution de la pression de vapeur en fonction de la température est présentée sur la figure VI.12 [Han 73]. Cette figure montre que la température du four doit être inférieure à 390 °C.



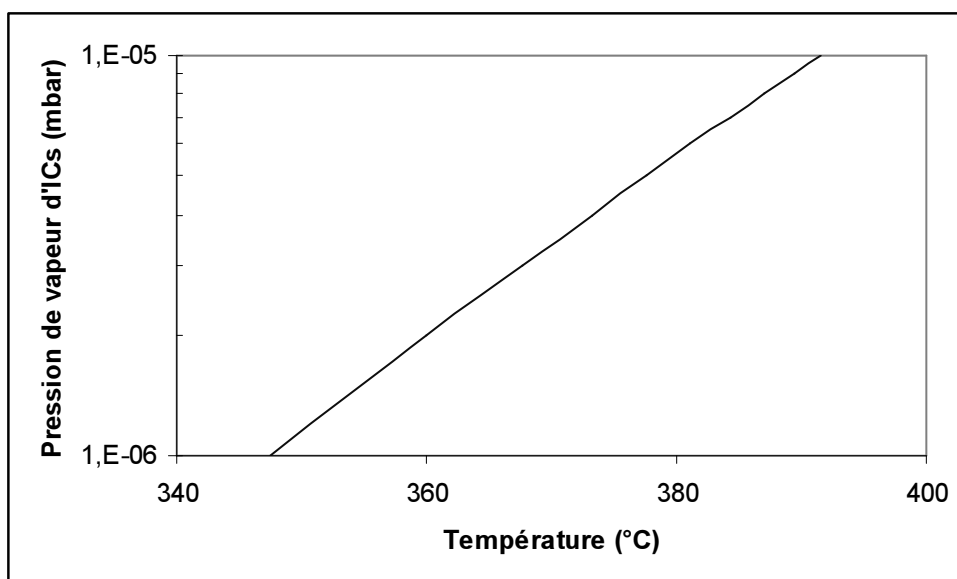


Figure IV.12: Pression de vapeur d'ICs en fonction de la température du four de césium.

#### IV.6.1 Etalonnage de la source

Pour connaître la température du tube ioniseur, des fours de Sn et de Cs, il est nécessaire de procéder à un étalonnage en température en fonction de la puissance de l'alimentation en courant du tube ioniseur. Les mesures de température de l'ioniseur et du four Sn sont effectuées par deux thermocouples en W/Re 5-26 protégés par une gaine en hafnium. Ces thermocouples sont placés au contact du tube d'ionisation et du four Sn. Pour que ces mesures soient significatives, nous avons pris en compte comme référence la température de la bride de fixation du corps de source. La courbe d'étalonnage est présentée sur la figure IV.13. Elle montre que pour une puissance de chauffage de 600 W, on atteint les températures maximales de 1820 et 1080 °C pour l'ioniseur et le four Sn respectivement. Cette gamme de température du tube d'ionisation est bien adaptée pour l'ionisation de surface efficace du Cs. Quant à celle du four d'étain, comme on va le voir dans ce qui suit, elle est largement suffisante pour permettre l'évaporation de l'étain.

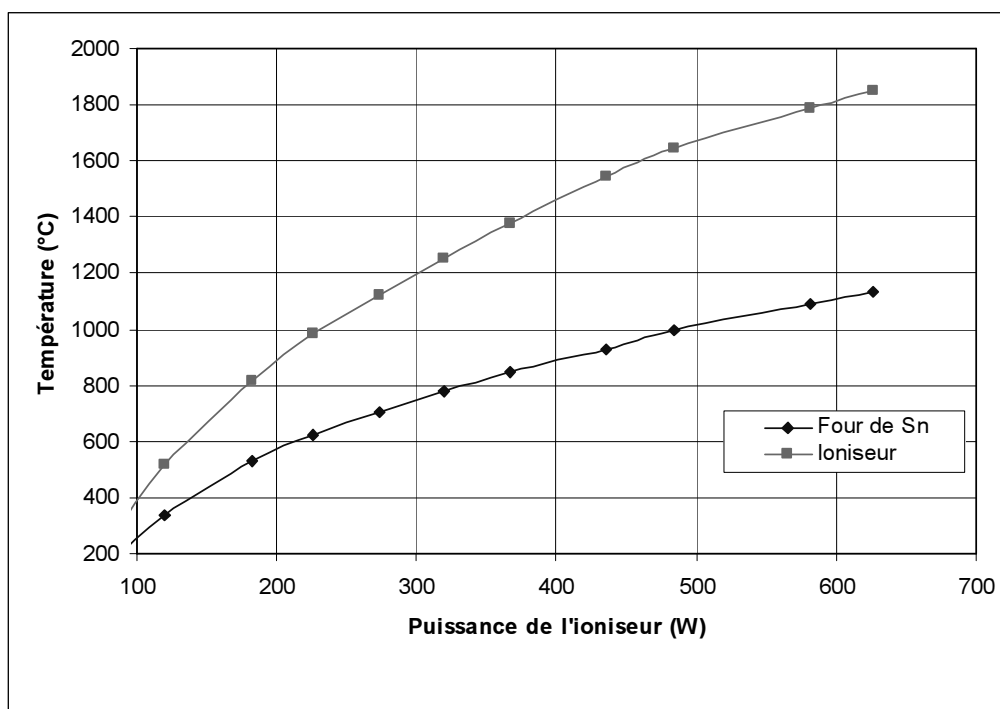


Figure IV.13: Courbe d'étalonnage du tube d'ionisation et du four de Sn.

Pour étalonner le four de Cs ( puissance en fonction de la température), nous avons placé un thermocouple Pt/Pt-Rh au centre du creuset d'ICs. Sa courbe d'étalonnage est présentée sur la figure IV.14.

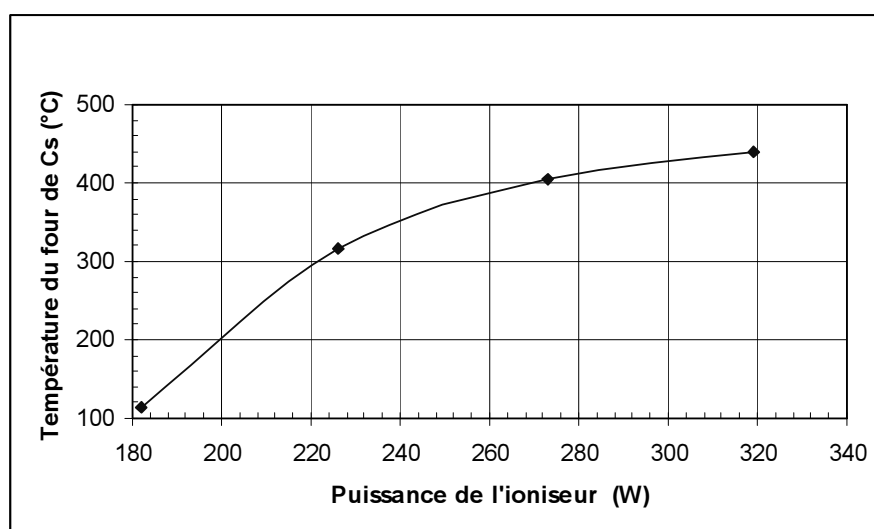


Figure IV.14 Courbe d'étalonnage du four de Cs.

A partir de cette courbe on peut déduire que l'alimentation du tube d'ionisation de la source à une puissance située entre 240 et 275 W chauffera le four de Cs à une température

entre 347 et 390 °C. Cette gamme de puissance est notre condition de chauffage du tube d'ionisation permettant la sortie optimale du courant de Cs<sup>+</sup>.

#### IV.6.2 Essai de la source sur le séparateur SIHL

Grâce à cette source nous avons réussi à étalonner le séparateur avec le faisceau de référence de Cs<sup>+</sup>. Elle a montré la possibilité de délivrer un faisceau de Cs<sup>+</sup> d'intensité de 2.3 nA lorsque le tube d'ionisation de la source est chauffé à une puissance 220 W. L'intensité de 1.4 µA est obtenue par chauffage du tube d'ionisation à 580 W et du four du Cs à une puissance de 70 W. Notons que cette source en mode ionisation de surface peut fonctionner sans interruption pendant deux mois.

Le champ magnétique appliqué pour séparer le <sup>133</sup>Cs est de 4080 G pour une tension d'extraction de 30 kV. Connaissant ce champ on peut remonter à celui qui sépare les isotopes d'étain Sn<sup>+</sup>. Sa valeur est donnée par la relation suivante :

$$\frac{B_{Cs}}{\sqrt{m_{Cs}}} = \frac{B_{Sn}}{\sqrt{m_{Sn}}} \quad (\text{IV.15})$$

B<sub>Cs</sub> et B<sub>Sn</sub> sont les champs magnétiques correspondants respectivement au Cs et l'isotope de Sn d'intérêt.

m<sub>Cs</sub> et m<sub>Sn</sub> sont les masses atomiques du Cs et l'isotope de Sn.

Dans le cas de l'isotope d'étain <sup>116</sup>Sn (Fig. IV.9), le champ magnétique permettant sa séparation est de 3810 G.

### IV.7 Production d'un faisceau de Sn<sup>+</sup>

#### IV.7.1 Pression de vapeur de Sn

La photoionisation de l'étain stable par laser nécessite son évaporation. Pour cela il est indispensable d'estimer la variation de la pression de vapeur de Sn en fonction de la température (figure IV.15) [Han 73].

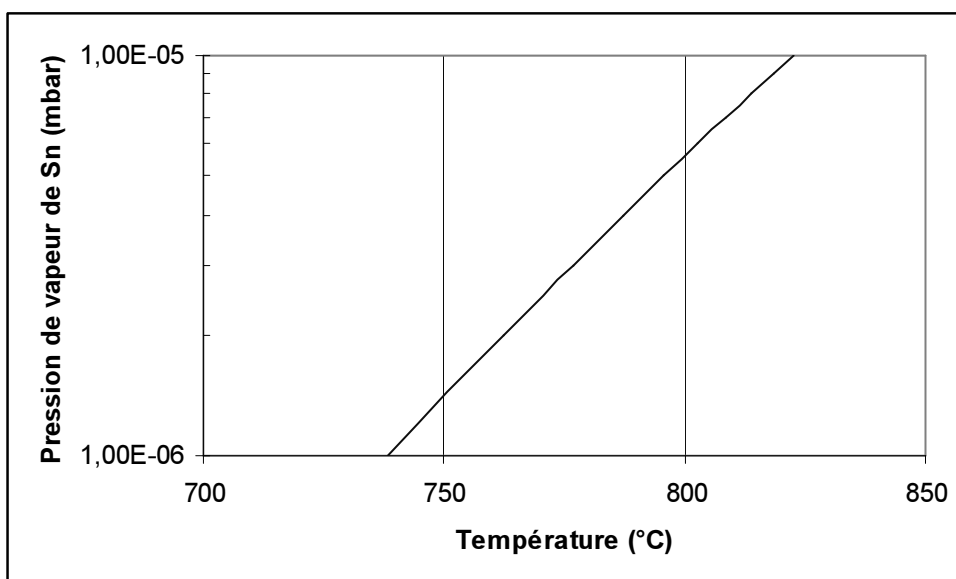


Figure IV.15 : Pression de vapeur de Sn en fonction de la température.

Pour maintenir la pression de vapeur inférieure à  $10^{-5}$  mbar, nécessaire au bon fonctionnement de la source, il faut que la température du four de Sn soit inférieure à 820 °C. Ce qui correspond à une puissance de chauffage inférieure à 280 W.

#### IV.7.2 Mesure de flux de Sn

La mesure précise du flux de vapeur d'étain sortant du tube d'ionisation par effusion est l'une des principales difficultés pour estimer l'efficacité d'ionisation. Citons quelques causes qui expliquent une telle difficulté :

- le mauvais vide dû au dégazage des parois de la source pendant le chauffage,
- la fuite des atomes Sn qui se condensent sur la partie froide du four (bouchon en graphite),
- l'évaporation de l'iodure de césium adsorbé par les parois lors de l'utilisation de la source pour l'ionisation de surface du Cs.

Pour éviter ces problèmes nous avons été amenés d'une part à procéder au dégazage de la source en la portant à une température supérieure à 1000 °C. D'autre part, nous avons implanté une bague en nitrure de bore à l'intérieur du four pour assurer une meilleure étanchéité.

Par ailleurs, l'évaporation de l'étain pouvait induire une métallisation de la source qui aurait provoqué un court-circuit entre les passages de courant et la bride qui supporte la source. Pour limiter cet effet, nous avons installé un hublot permettant de contrôler le dépôt d'étain et d'optimiser ainsi la température limite de chauffage.

Ainsi que le montre la figure IV.16, le principe de la mesure du flux d'étain est basé sur le dépôt d'une couche mince sur un cristal piézoélectrique en quartz qui reçoit des excitations à la fréquence  $\nu_1$  d'un oscillateur. L'action de cette couche sur le quartz se traduit par une perturbation qui engendre une variation de réponse de la membrane piézoélectrique.

La différence de fréquence  $\nu_1 - \nu_2$  mesurée est transformée par un circuit différentiateur et un intégrateur en un signal donnant la vitesse de dépôt et l'épaisseur totale déposée.

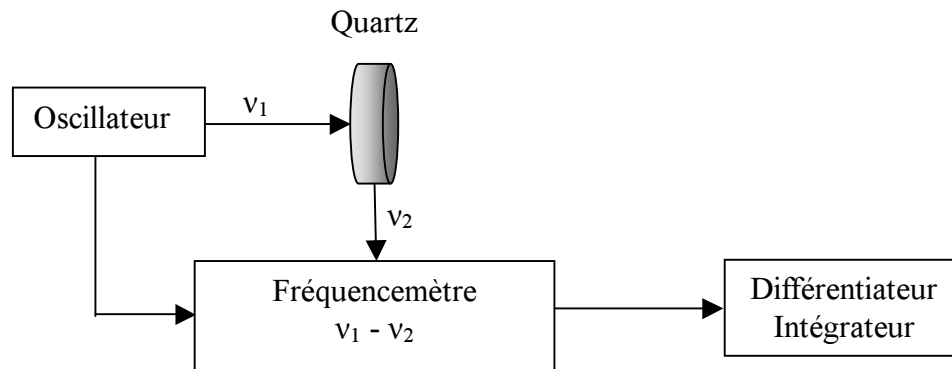
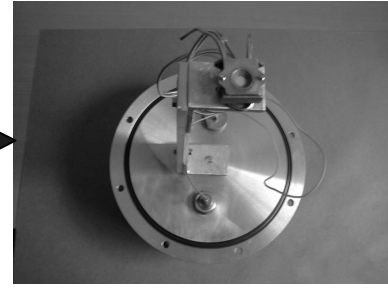


Figure IV.16: Principe de mesure de microbalance à quartz.

Cet outil permet de mesurer le flux de n'importe quel élément à condition de tenir compte de ces caractéristiques qui sont sa densité, son impédance acoustique et son facteur de forme. Ces valeurs sont des données tabulées pour tous les éléments du tableau périodique. Pour assurer une meilleure sensibilité, il faudrait que la température du quartz soit inférieure à 100 °C et que l'épaisseur déposée totale soit limitée à 1  $\mu\text{m}$ .

### **Dispositif expérimental pour la mesure du flux Sn**

Le dispositif expérimental se compose de deux chambres en dural reliées entre elles (Fig. IV.17). La première est conçue pour fixer l'ensemble source, la seconde abrite le système de détection à quartz. Ce dernier est refroidi à l'eau afin de limiter sa température à moins 100 °C. Le vide dans les chambres est assuré par un groupe de pompage composé d'une pompe à diffusion de  $7 \times 10^4$  l/min et une pompe primaire de 200 l/min.



Montage du quartz sur sa bride

Figure IV.17: Banc de test utilisé pour mesurer le flux de Sn.

### IV.7.3 Estimation du flux total d'atomes

Nous calculons dans ce paragraphe le flux total d'atomes ( $N_t$ ) de Sn confinés dans le tube d'ionisation à partir de la mesure du flux d'atomes de Sn effectuée par la microbalance. Pour cela nous avons considéré deux géométries d'effusion.

#### Effusion à travers une ouverture idéale

Pour ne pas tenir compte de l'effet de collimation du tube ioniseur, nous supposons dans cette configuration que la vapeur de Sn s'échappe à travers un orifice de rayon  $R_1$  (Fig. IV.18). Par ailleurs, le fait que la pression de vapeur de Sn soit inférieure à  $10^{-5}$  mbar et que le diamètre d'ouverture de sortie de Sn soit de l'ordre de 3 mm, le flux d'atomes de Sn est supposé être en régime moléculaire [Ram 56]. Cette approximation est justifiée car le rayon du tube d'ionisation est négligeable devant le libre parcours moyen des atomes d'étain. Dans ces conditions, le flux d'atomes de Sn (atomes /s)  $dN$  qui s'échappent sous un angle solide  $d\Omega$  avec un angle d'ouverture  $2\theta$ , est donné par l'expression suivante :

$$dN = \frac{d\Omega}{4\pi} n \bar{V} \cos \theta A_s \quad (\text{IV.16})$$

$n$  est la densité totale d'atomes dans le four,

$\bar{V}$  est la vitesse moyenne thermique des atomes dans le tube four. Elle est donnée par  $(8kT/\pi m)^{1/2}$ .  $A_s$  est la surface de l'orifice du four.

En intégrant l'équation IV.16 sur le demi-espace nous obtiendrons le flux total d'atomes qui s'échappent. Il est donné par :

$$N_t = \frac{n \bar{V} A_s}{4} \quad (\text{IV.17})$$

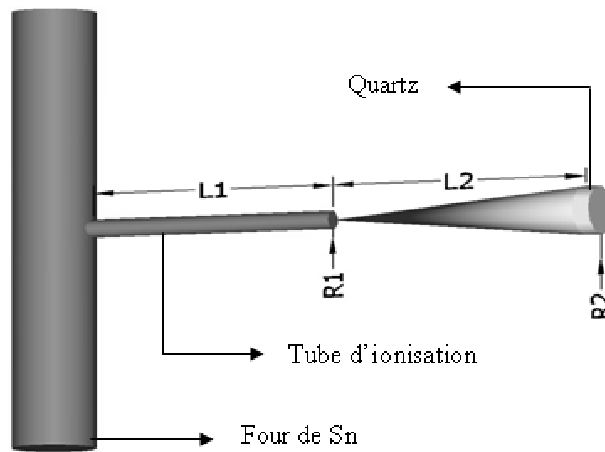


Figure IV.18 : Principe de collection du flux de Sn sur le quartz.

### Effusion à travers un tube

Dans le cas de l'effusion à travers un tube, la détermination du flux total d'atomes dans le tube nécessite de tenir compte de l'effet de collimation. On montre dans ces conditions que son expression est obtenue par l'équation IV.17 corrigée par un facteur géométrique K [Ram 56], soit :

$$N_t = \frac{n\bar{V}A_s}{4K} \quad (\text{IV.18})$$

Avec  $\frac{1}{K} = \frac{8R_1}{3L_1}$

Le flux d'atomes estimé dans l'angle solide vu par le quartz (figure IV.17) est obtenu par la relation :

$$N_d = \frac{n\bar{V}A_s}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\theta_m = \frac{R_2}{L_2}} \sin \theta \cos \theta d\theta = \frac{n\bar{V}A_s A_d}{4\pi L_2^2} \quad (\text{IV.19})$$

$A_d$  représente la surface utile de détection du quartz.

Le rapport entre IV.18 et IV.19 nous donne la relation entre le flux total d'atomes présents dans le tube et le nombre d'atomes arrivant à la surface, soit :

$$\frac{N_t}{N_d} = \frac{L_2^2}{KR_2^2} \quad (\text{IV.20})$$

Dans nos conditions expérimentales ( $L_1 = 3$  cm,  $L_2 = 32$  cm,  $R_1 = 0.15$  cm,  $R_2 = 0.4$  cm), le flux total présent dans le tube est  $N_t = 853.3_d$ . A partir du nombre d'atomes détectés sur le quartz, nous pouvons remonter au flux total présent dans le tube d'ionisation. La courbe de  $N_t$  en fonction de la puissance de chauffage de l'ioniseur est donnée par la figure IV.19. Elle montre que la limite de détection du système quartz est de  $4.83 \cdot 10^{12}$  atomes/s.

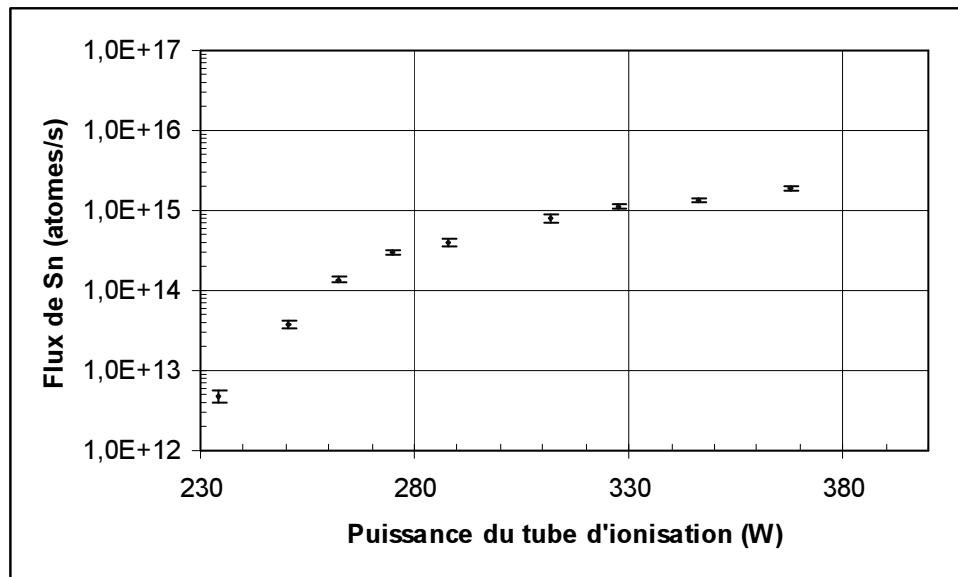


Figure IV.19 : Flux d'atomes de Sn en fonction de la puissance de chauffage de l'ioniseur.

#### IV.7.4 Mesure expérimentale de l'efficacité d'ionisation

L'efficacité d'ionisation mesurée possède l'expression suivante :

$$\varepsilon_{\text{exp}} = \frac{N_i}{N_t I} \quad (\text{IV.21})$$

Où  $N_i$  est le nombre d'ions détectés par unité seconde d'un isotope donné,  $N_t$  le flux d'atomes confinés dans le tube d'ionisation pour une puissance de chauffage donnée, et  $I$  l'abondance isotopique.

L'efficacité d'ionisation a été mesurée en fonction de la température de chauffage du tube d'ionisation pour l'isotope  $^{116}\text{Sn}$  (Fig. IV 20). On constate une perte d'efficacité d'ionisation au-delà 1140 °C. Cette perte pourrait s'expliquer soit par une saturation de l'ionisation liée à la faible puissance du laser d'ionisation soit par l'ionisation de surface qui



pourrait se produire sur les parois du tube. Cependant, dans l'intervalle de température considéré, l'ionisation de surface de l'étain est négligeable (efficacité  $\approx 5 \cdot 10^{-13}$ ). Compte tenu de l'évolution du flux en fonction de la température, il apparaît clairement que l'efficacité d'ionisation est constante jusqu'à 1140 °C.

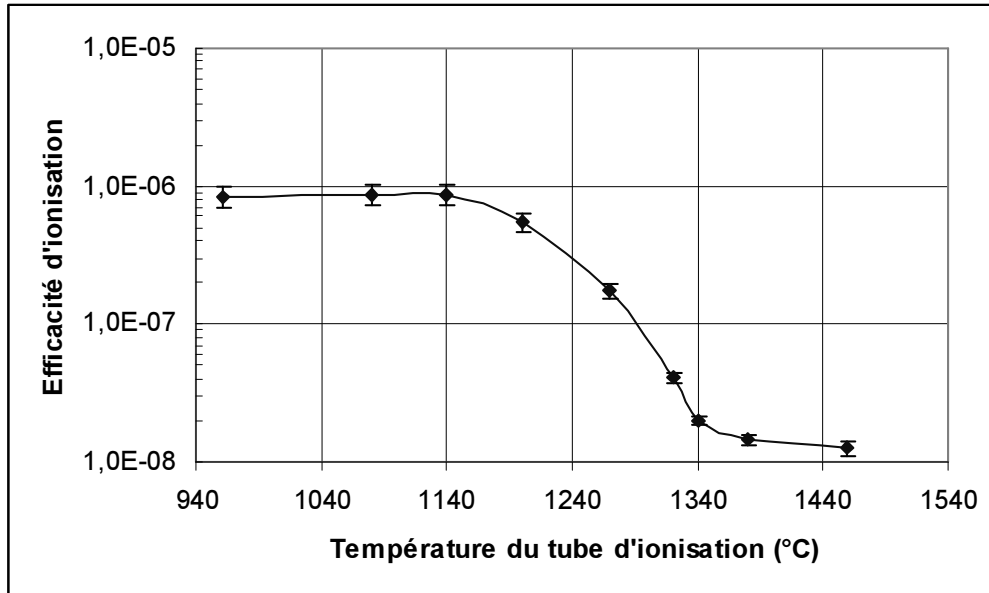


Figure IV.20 Efficacité d'ionisation en fonction de la température de chauffage de l'ioniseur.

Ainsi à 1140 °C, l'efficacité d'ionisation de la source est de  $(0,9 \pm 0,1) \cdot 10^{-6}$ .

La différence entre la valeur estimée de l'efficacité d'ionisation ( $2 \cdot 10^{-6}$  calculée au §IV.3) et expérimentale peut être expliquée par plusieurs facteurs :

- manque de puissance du deuxième étage (c'est la plus grande contribution).
- neutralisation du faisceau par l'émission d'électrons du tube d'ionisation chauffé à 1100 °C,
- perte par un recouvrement laser-vapeur d'étain non optimal dû à la distorsion du tube sous l'effet thermique ainsi qu'au mauvais alignement du laser à cause de la grande distance de transport du faisceau laser.

L'efficacité d'ionisation de la source obtenue est un bon ordre de grandeur. Elle peut être améliorée si on augmente la puissance laser du deuxième étage.

#### IV.7.4.1 Séparation isotopique des ions de Sn

Afin d'observer séparément les différents isotopes de Sn, nous avons amélioré la résolution du séparateur en diminuant la largeur de la fente de définition placée dans le plan focal de l'aimant. Nous avons estimé les abondances des isotopes à partir du rapport surface du pic caractéristique/surface totale de tous les pics du spectre. Les mesures effectuées ainsi que celles de littérature sont données par le tableau IV.2. Les abondances des isotopes mesurées (Tab. IV.2) sont comparables aux abondances réelles, ceci montre bien que les lasers ionisent tous les isotopes d'étain en respectant l'abondance isotopique.

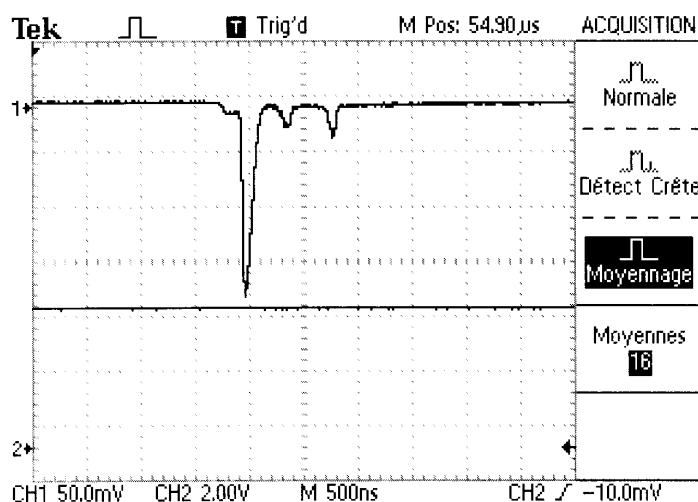


Figure IV.21 : Spectre de  $^{118}\text{Sn}$  mesuré.

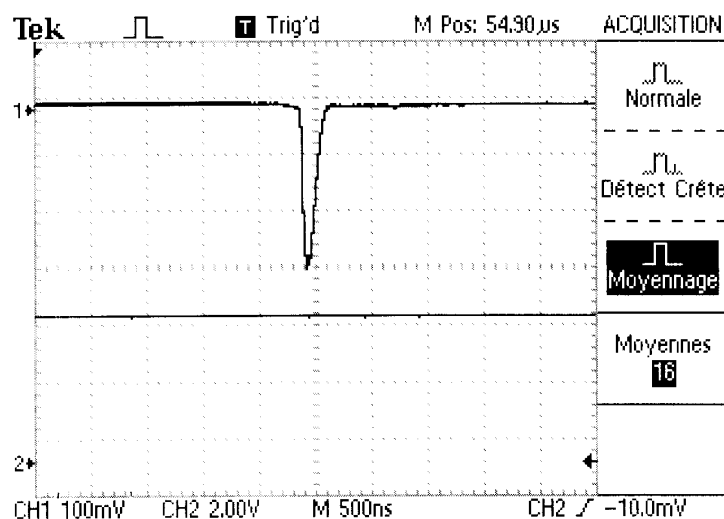


Figure IV.22 : Spectre de  $^{120}\text{Sn}$  mesuré.

Isotope de Sn	Amplitude (mv)	Largeur (ns)	Nombre d'ions/s	Abondance mesurée (%)	Abondance réelle
112	14	70	245	$1.3 \pm 0.2$	1
114	14	40	140	$0.7 \pm 0.1$	0.7
115	-	-	-	-	0.36
116	70	140	2450	$12.7 \pm 2$	14.5
117	70	80	1400	$7.3 \pm 1$	7.7
118	170	100	4250	$22 \pm 4$	24.2
119	75	73	1369	$7.1 \pm 1$	8.6
120	280	100	7000	$36.4 \pm 7$	32.6
122	44	90	990	$5.1 \pm 1$	4.6
124	40	140	1400	$7.3 \pm 1$	5.8

Tableau IV.2 : Comparaison des abondances isotopiques mesurées avec celles données par la littérature.

## IV.8 Caractérisation optique du faisceau de Sn<sup>+</sup>

L'émittance est une grandeur fondamentale pour la caractérisation d'un faisceau d'ions issus d'une source. Elle est obtenue par le produit de la taille géométrique du faisceau par sa divergence angulaire. Plus sa valeur est faible, plus le faisceau est focalisé et donc facile à conduire tout le long d'une ligne de faisceau avec peu de perte. En plus de la pureté, une faible émittance est exigée pour certaines applications des faisceaux d'ions radioactifs comme par exemple passage dans des fentes très fines. Ces deux caractéristiques permettent d'atteindre une haute résolution en masse sur les installations de production de ces faisceaux [Wen 03].

Nous allons présenter dans ce qui suit les mesures d'émittances que nous avons effectuées à l'aide d'un émittance-mètre développé par une équipe du laboratoire CSNSM [Hen 01]. Ces mesures seront ensuite comparées aux émittances des sources FEBIAD et ECR.

### IV.8.1 La notion d'émittance

Le mouvement d'un ion est défini par la résolution de l'équation fondamentale de la dynamique  $\frac{d\vec{p}}{dt} = \vec{F}$  avec  $\vec{F} = q(\vec{E} + \vec{V} \wedge \vec{B})$ . La combinaison de ces deux équations permet

d'obtenir trois équations différentielles de second ordre dont les solutions générales peuvent être déterminées par la connaissance à l'instant  $t_0$  de la position de l'ion ( $x, y, z$ ) et de sa quantité de mouvement ( $p_x, p_y, p_z$ ).

Comme nous devons suivre ces variables au cours du temps, l'étude du mouvement de l'ion est effectuée dans un espace à six dimensions ( $x, p_x, y, p_y, z, p_z$ ) appelé espace de phase. Dans cet espace, la connaissance d'un point représentatif de l'ion à un instant donné, nous permet de savoir l'évolution de sa position au cours du temps. Pour un faisceau d'ions, l'étude dans l'espace de phase de ces six variables pour chaque ion se réduit à une description collective où on décrit l'ensemble de points représentatifs des ions par un hyperellipsoïde dite volume d'émittance :  $V = \iiint \iiint dx dp_x dy dp_y dz dp_z$ .

La valeur d'émittance est conservative la condition exprimée par le théorème de Liouville : « Sous l'action de forces issues de dérivées d'un Hamiltonien, le volume d'émittance dans l'espace des phases est invariant ».

Au cours de la mesure d'émittance nous négligeons les forces non conservatives comme celle due à la diffusion du faisceau d'intérêt ( $\text{Cs}^+, \text{Sn}^+$ ) par les gaz résiduels dans le séparateur. Cette approximation est justifiée par le fait que nous travaillons à faible pression ( $10^{-5}$  à  $10^{-6}$  mbar). Les interactions coulombiennes entre les ions sont négligées (absence de charge d'espace) car les faisceaux ( $\text{Cs}^+, \text{Sn}^+$ ) ont une intensité faible et sont peu focalisés. Etant donné que les faisceaux d'ions produits dans le séparateur ont une énergie faible, la perte d'énergie par émission de rayonnement est également négligeable. Tenant compte de cette situation nous pouvons déduire que seules les forces électriques et magnétiques sont appliquées au faisceau d'ions. Il s'agit de forces conservatives.

En pratique nous travaillons à une vitesse transverse  $\dot{x}$  et  $\dot{y}$  ( $3 \cdot 10^3$  m/s déduite à partir de la largeur de la distribution Maxwellienne de vitesse qui est typiquement de 2 eV) beaucoup plus faible que la vitesse longitudinale des ions ( $4 \cdot 10^5$  m/s). Par ailleurs, au premier ordre les plans ( $x, p_x$ ), ( $y, p_y$ ) et ( $z, p_z$ ) sont découplés. D'autre part les éléments de transport du faisceau d'ions sont caractérisés par des matrices de transferts indépendantes de coordonnées spatiales. Alors nous pouvons simplifier la représentation du faisceau d'ions. On donne pour chaque position de l'ion une divergence angulaire obtenue par le rapport des quantités de mouvement transverse et longitudinale. Etant donné que la vitesse longitudinale est une constante, nous pouvons remplacer  $p_x$  par la divergence angulaire  $x' = p_x/p_z$  (idem  $p_y$  par  $y' = p_y/p_z$ ). D'où nous obtenons les deux coordonnées de la figure d'émittance qui sont la divergence angulaire et son déplacement. La projection du volume d'émittance dans les plans ( $x, x'$ ) et ( $y, y'$ ) est une ellipse qui délimite un ensemble de points qui définissent les traces des ions (Fig. IV.23). L'ellipse marginale est définie à 100%, elle couvre toute l'enveloppe du faisceau (Fig. IV.23). Si cette ellipse délimite les traces des ions à 95 et 68%, les précisions relatives sur l'enveloppe du faisceau sont respectivement à deux écarts types et un écart type.

Comme les sources d'ions que nous envisageons d'étudier (la source à ionisation de surface et la source laser) sont des sources thermiques (distribution Maxwellienne), la densité des ions est une gaussienne.

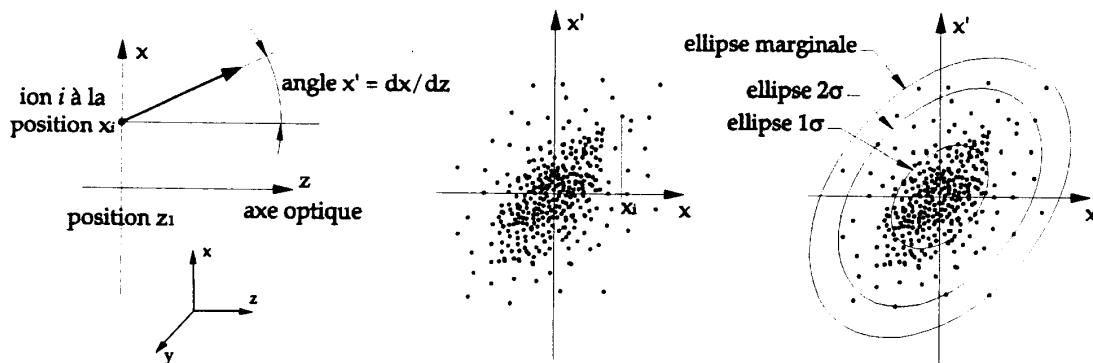


Figure IV.23 : Représentation de la divergence angulaire de l'ion en fonction de sa position [Lef 03].

La figure d'émittance permet de connaître la convergence du faisceau. La forme du faisceau est fonction de la pente de l'axe principal de l'ellipse. Il existe trois situations présentées dans la figure IV.24 :

- La pente est positive, le faisceau est divergent
- La pente est négative, le faisceau est convergent
- La pente est nulle, le faisceau est parallèle

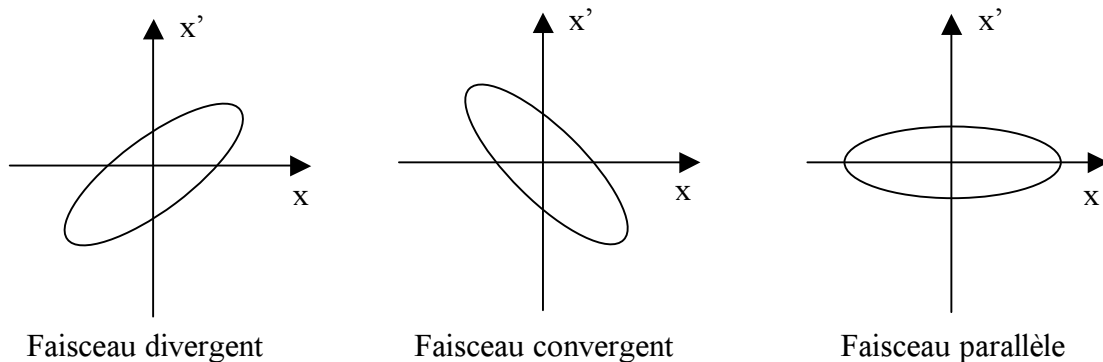


Figure IV.24: Différentes configurations de l'émittance permettant de déterminer la forme du faisceau d'ions.

Les émittances qui seront présentées dans ce qui suit sont déterminés à 95% selon la relation suivante :

$$\varepsilon_u = \iint du du' ; u = x, y \quad (\text{IV.22})$$

En pratique la détermination de la valeur d'émittance se fait par la connaissance de la surface du rectangle dans lequel est inscrit l'ellipse multipliée par  $\pi/4$ . Elle sera exprimée en  $\pi$ . mm.mrad.

#### IV.8.2 Dispositif expérimental pour la mesure d'émittance des faisceau $\text{Cs}^+$ et $\text{Sn}^+$

L'émittance-mètre que nous avons utilisé est représenté par la figure IV.25. Il a été conçu pour mesurer les émittances de faisceaux d'ions dans la gamme d'énergie de quelques keV à 80 keV [Hen 01]. Cet instrument a été testé à ISOLDE au CERN et au GANIL. Il a l'avantage de permettre l'analyse des faisceaux de faible intensité ( $\leq 10^6$  ions/s) grâce à la détection par un multiplicateur d'électrons qui augmente sa sensibilité. Pour les faisceaux d'une intensité dépassant  $10^{12}$  ions/s, leurs analyses sont effectuées sur une cage Faraday. L'orientation des axes d'analyses de l'émittance-mètre est réalisée à partir de deux brides tournantes posées sur deux supports. Cet émittance-mètre a l'avantage d'être compact (1 m de longueur), ce qui facilite sa mobilité et son adaptation.

Ainsi que le montre la figure IV.25, l'émittance-mètre a été monté au bout de la ligne du séparateur SIHL juste après le plan focal de l'aimant. Pour la focalisation du faisceau d'ions à l'entrée de l'émittance-mètre, nous utilisons deux quadripôles électrostatiques. Le vide en bout de ligne ( $10^{-6}$  mbar) est assuré par une pompe turbomoléculaire de 150 l/s.

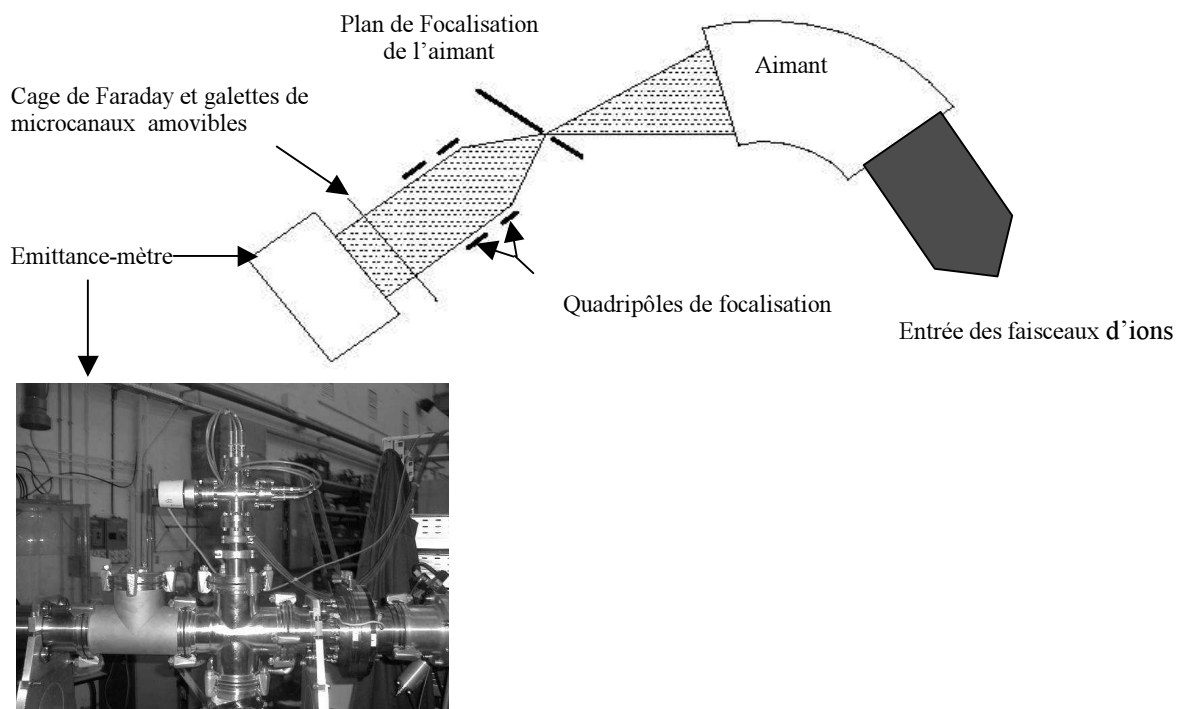


Figure IV.25 : Montage de l'émittance-mètre sur le séparateur S.I.H.L.

### IV.8.3 Procédure de mesure

Pour déterminer la position et la divergence du faisceau d'ion, on effectue un balayage électrostatique du faisceau d'ions devant deux fentes fixes (Fig. IV.26). Le balayage au niveau de la fente 1 est assuré par un doublet d'électrodes électrostatiques portées à des polarisations opposées. Le faisceau subit une translation dans la direction transverse sans modification de l'angle. Dans ces conditions, il est possible de sélectionner pour chaque potentiel appliqué au niveau des deux premières électrodes, une portion du faisceau dont les dimensions sont définies par la taille de la fente. A partir du troisième doublet d'électrode situé après la fente 1 nous pouvons déplacer la portion émergée devant la fente 2 pour mesurer sa divergence angulaire. L'intensité du faisceau d'ions sortant de chacune des fentes est mesurée par une cage de Faraday ou par un multiplicateur d'électrons et ce pour plusieurs tensions appliquées aux électrodes. La durée de mesure est réglée selon la statistique de comptage de la portion du faisceau d'ions détectés. Les tensions des électrodes pouvant atteindre 1250 V, sont fournies par six alimentations dont trois en polarisation positive et trois en polarisation négative. Elles sont contrôlées par une interface LabVIEW qui permet aussi l'acquisition et le traitement des données.

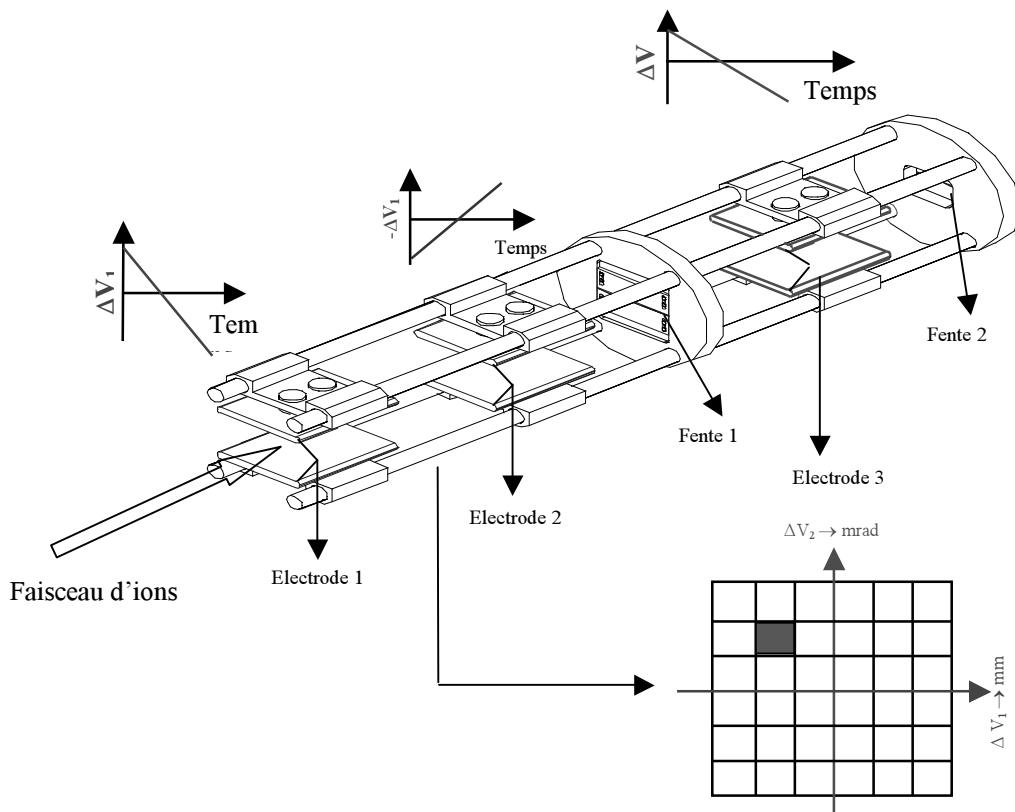


Figure IV.26 : Système d'électrodes pour le balayage du faisceau d'ions.

## IV.8.4 Les mesures d'émittances

Dans ce qui suit nous allons présenter les résultats expérimentaux correspondants à la source à ionisation de surface et la source laser. Nous avons dû limiter la tension d'extraction durant la campagne de mesures à 18 kV pour éviter des claquages observés pendant les mesures.

### IV.8.4.1 Le faisceau de $\text{Cs}^+$ produit par la source à ionisation de surface

Avec un chauffage du tube d'ionisation de la source à une température de 1080 °C, le faisceau d'ions  $\text{Cs}^+$  est extrait à 18 kV avec une intensité de 7 nA. La figure d'émittance dans le plan vertical ( $x, x'$ ) que nous avons obtenue dans ces conditions est présentée dans la figure IV.27. L'émittance correspondant à 95% de la surface de l'ellipse est de  $9 \pi \text{ mm.mrad}$ . Avec une pente négative, le faisceau est bien convergent dans ce plan.

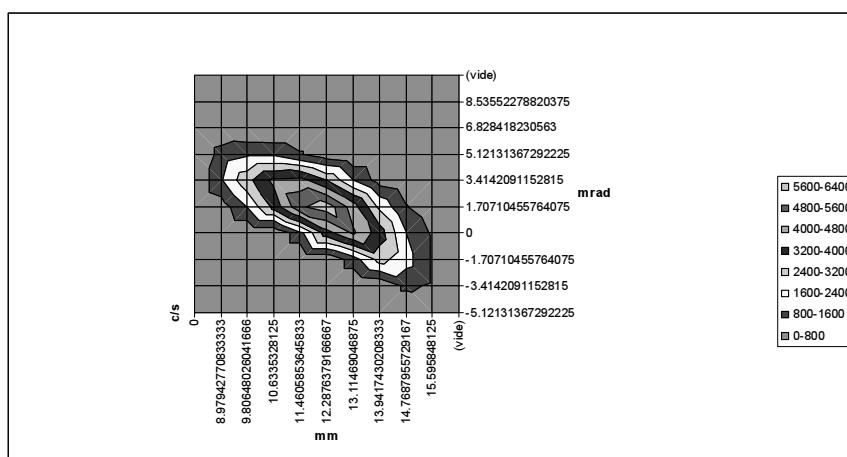


Figure IV.27 : Diagramme d'émittance du faisceau d'ions de  $\text{Cs}^+$  obtenu dans le plan vertical ( $x, x'$ ) à une énergie du faisceau de 18 keV.

Pour obtenir la figure d'émittance dans le plan horizontal ( $y, y'$ ), il suffit de tourner l'émittance-mètre par rapport au plan vertical de 90°. La figure IV.28 donne le diagramme d'émittance du faisceau  $\text{Cs}^+$  dans le plan horizontal. On obtient une valeur d'émittance de  $10 \pi \text{ mm.mrad}$  pour 95% de l'enveloppe totale du faisceau. Dans ce plan nous pouvons remarquer que le faisceau d'ions est divergent. C'est ce que nous attendions car le faisceau ne peut pas avoir les mêmes comportements dans les deux plans (conséquence de la conservation).



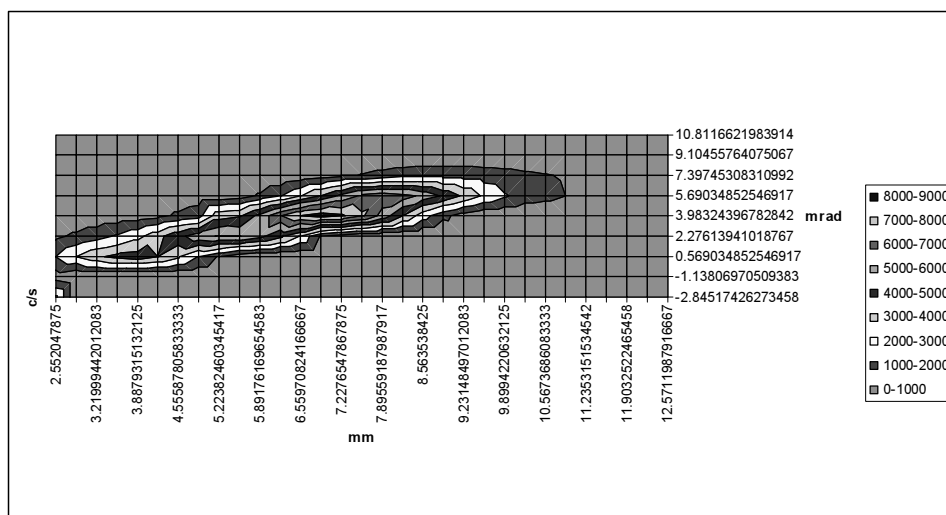


Figure IV.28 : Diagramme d'émittance du faisceau de  $\text{Cs}^+$  obtenu dans le plan horizontal ( $y, y'$ ) à une énergie de 18 keV.

#### IV.8.4.2 Emittance du faisceau $\text{Sn}^+$ produit par photoionisation

Le tube d'ionisation est porté à une température de 1100 °C et le faisceau d'ion  $\text{Sn}^+$  obtenu par photoionisation est extrait à 15 keV. L'optimisation du faisceau est réalisée sur les galettes de microcanaux placées juste en aval de l'émittance-mètre (Fig. IV.29). Les figures d'émittances obtenues pour les faisceaux  $^{118}\text{Sn}^+$  et  $^{120}\text{Sn}^+$  dans le plan horizontal sont présentées sur les figures IV.29 et IV.30. La valeur de l'émittance pour 95 % du faisceau total à une énergie de 15 keV est respectivement de 7.7 et 8.74  $\pi\cdot\text{mm}\cdot\text{mrad}$  pour le plan horizontal. D'après ces valeurs d'émittances nous remarquons que l'émittance du faisceau d'ions est presque invariante en fonction de la masse de l'isotope.

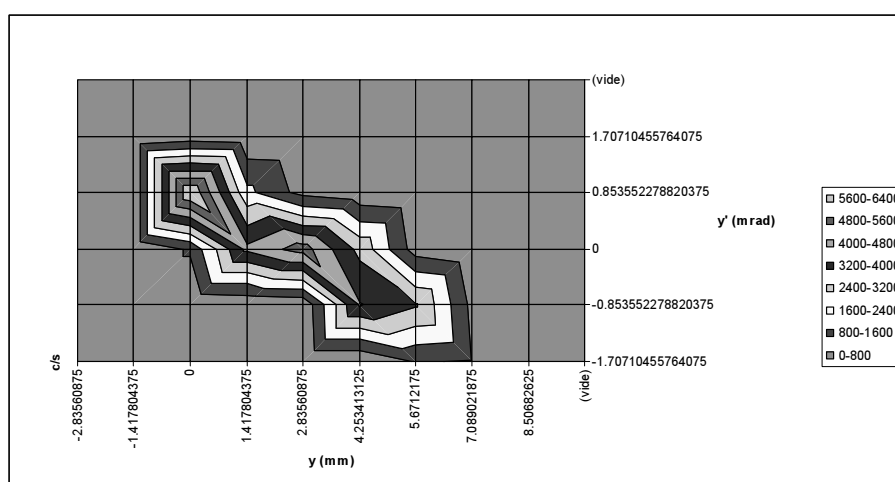


Figure IV.29 : Diagramme d'émittance du faisceau d'ions de  $^{118}\text{Sn}^+$  obtenu dans le plan vertical ( $y, y'$ ) à une énergie du faisceau de 15 keV.

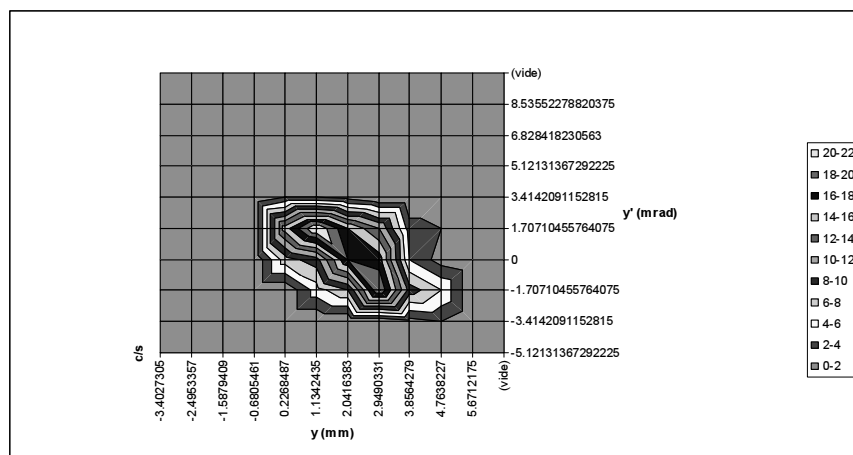


Figure IV.30 : Diagramme d'émittance du faisceau de  $^{120}\text{Sn}^+$  obtenu dans le plan horizontal  $(y, y')$  à une énergie de 15 keV.

Les mesures d'émittance que nous avons effectuées dans le plan vertical sont inexploitable. En effet, il n'était pas possible d'observer une figure d'émittance complète (faisceau trop incliné) de Sn et ce même en jouant sur les tensions de balayage des électrodes. Pour résoudre ce problème nous envisageons à installer un déflecteur qui servira à corriger l'inclinaison du faisceau par rapport aux fentes de l'émittance-mètre, et une lentille Einzel pour la focalisation du faisceau.

#### IV.8.5 Comparaison des résultats

Dans le tableau IV.3, nous comparons nos résultats de mesures d'émittances de la source à ionisation de surface et de la source laser avec l'émittance des sources à plasma de type FEBIAD ou ECR. Les émittances à 30 keV sont déduites à partir de la règle de diminution de l'émittance donnée par  $\sqrt{E_1} \varepsilon_1 = \sqrt{E_2} \varepsilon_2$ , avec  $E_1$  et  $E_2$  les énergies du faisceau.

Nous constatons que l'émittance de la source laser est comparable à celle de la source à ionisation de surface. Sa valeur est deux à trois fois plus faible que celle de la source FEBIAD. Cette valeur est 10 fois plus petite que celle de la source ECR de type NANOGAN présentée dans le cahier des charges Spiral II ( $< 70 \pi \cdot \text{mm} \cdot \text{mrad}$ ) [SPI 2].

	Diamètre du trou d'émission (mm)	Emittance à 30 keV ( $\pi \cdot \text{mm} \cdot \text{mrad}$ )
Source à ionisation de surface	3	7
Source laser	3	6
La source FEBIAD	1.6	15 à 20 [Wen 03]

Tableau IV.3 : Comparaison des émittances de sources d'ions étudiées pour le projet SPIRAL 2.

## IV.9 Conclusion

Après avoir défini un schéma d'ionisation de l'étain adapté à notre système laser, nous avons conçu et réalisé un prototype d'ensemble cible-source pour développer la production de faisceaux d'étain. Ce prototype permet à la fois de délivrer un faisceau de césium à une intensité réglable, et de produire par photo-ionisation résonante laser un faisceau d'étain.

Afin de caractériser les performances et les régimes de fonctionnement du prototype, différents systèmes de mesure ont été mis au point. En particulier, un banc de mesure de flux de vapeur d'étain a été réalisé pour pouvoir mesurer l'efficacité d'ionisation.

L'ensemble de nos travaux a mené à la production d'un faisceau d'étain stable clairement identifiable, avec une efficacité proche de l'efficacité de la source laser d'ISOLDE.

Les mesures d'émittance réalisées par la suite ont permis de vérifier la qualité optique des faisceaux produits. Les émittances mesurés pour le faisceau de Cs sont tout à fait comparables à celles de la littérature [Wen 03]. Celles du faisceau d'étain sont tout à fait comparables à celles du césium.

Afin d'améliorer les mesures d'émittance dans le plan Y, nous envisageons d'installer prochainement des éléments électrostatiques en bout du séparateur hors ligne.

En raison de l'importance, pour les prochaines applications, de la pureté d'un faisceau séparé en ligne, les prochains développements concerneront le tube d'ionisation. Des travaux avec un tube en TaC sont envisagés. Ils seront complétés par l'étude de l'action de l'émission électronique du tube d'ionisation sur la neutralisation du faisceau d'ions produit par le laser.

Pour permettre les développements en ligne, le projet d'installer un laser YAG de 20 kHz, ayant 100 W de puissance et des pulses de 80 ns est en cours.

Les développements laser continueront également sur d'autres faisceaux d'éléments d'intérêt, comme le Cu, le Ni ou le Zn...

## Chapitre. V. Conclusion et perspectives

Les travaux de cette thèse s'inscrivent dans le cadre du programme de R&D PARRNe. Ce programme vise d'une façon générale à déterminer les conditions les plus favorables à la production de faisceaux d'isotopes riches en neutrons intenses. Les données expérimentales recueillies depuis plus de 8 ans bénéficient les projets de futures installations comme SPIRAL-2 ou EURISOL.

Nos récents travaux au CERN ont validé l'intérêt de la photo-fission comme mode de production de faisceaux par séparation d'isotopes en ligne. Ces travaux ont permis de préparer le projet ALTO ; l'installation d'un accélérateur d'électrons à l'IPN d'Orsay. En fournissant jusqu'à 10  $\mu$ A d'électrons à 50 MeV, cet accélérateur permettra d'approfondir le programme actuel de physique et de R&D auprès du séparateur en ligne PARRNe-2.

Le cœur de mes travaux de développement concerne l'ensemble cible – source d'ions. Afin de produire efficacement des faisceaux d'isotopes de courte durée de vie, il s'avère indispensable d'élaborer des cibles solides de structure poreuse. Les performances de telles cibles dépendent de leur tenue à haute température. Par conséquent, nous avons mis en place un programme d'analyse des cibles. Les premières cibles analysées ont été des cibles de type UC<sub>x</sub> obtenues par la réduction carburante d'une poudre de dioxyde d'uranium dispersée dans une matrice de carbone. Leurs analyses par Diffraction X et MEB prouvent l'efficacité de cette technique de fabrication issue d'ISOLDE (CERN). De plus elles révèlent que la taille moyenne des grains de la cible poreuse ne varie pratiquement pas de 1800 à 2200 °C (de l'ordre de 27  $\mu$ m). L'observation de carbure d'uranium majoritairement sous forme de UC<sub>2</sub> indique qu'une température cible très supérieure à 2200 °C ne permet pas une exploitation en ligne fiable. Ce programme d'analyse se poursuivra avec les essais de chauffage longue durée prévus pour le projet SPIRAL-2. De plus, nous envisageons d'étendre ce programme d'analyse à d'autres types de cible d'intérêt, comme par exemple une cible en carbure de thorium.

Les cibles que nous avons élaborées et étudiées ont été exploitées en ligne afin d'approfondir nos connaissances sur la production de faisceaux riches en neutrons de très courte durée de vie. Cette expérience en ligne a été réalisée au sein de la collaboration EURISOL, avec la participation d'ISOLDE (CERN), de l'Institut für Kernchemie (Université

de Mayenne) et du Laboratori Nazionale di Legnaro (INFN). Les analyses que j'ai entreprises, à partir des données de l'expérience, ont permis de déterminer pour les alcalins de fission, le processus contrôlant leur relâchement hors de la cible ainsi que leur temps moyen de sortie.

Utilisant les spectres gamma et neutrons réalisés, j'ai également établi les productions mesurées. Grâce à l'utilisation du détecteur de neutrons de l'Université de Mayence, nous avons pu identifié des alcalins très riches en neutrons, notamment le  $^{99}\text{Rb}$  ( $T_{1/2} = 50.3$  ms) et le  $^{148}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 158$  ms).

En corrigeant les productions mesurées des isotopes de Rb et Cs par les pertes dues à la dynamique de sortie de la cible, nous avons établi les productions relatives de ces isotopes dans la cible épaisse. Les productions relatives de  $^{99}\text{Rb}$  et  $^{148}\text{Cs}$  sont une première. Ces productions relatives ont été obtenues avec une bonne précision et sont en excellent accord avec les données de sections efficaces dans la littérature.

Le contexte expérimental actuel révèle clairement la nécessité de disposer de sources d'ions sélectives afin de pouvoir exploiter les faisceaux radioactifs d'isotopes de courte durée de vie. Ces faisceaux constituent une grande partie des faisceaux d'intérêt et leur contamination par des isotopes plus proches de la vallée de la stabilité doit être évitée. La photo-ionisation résonnante par laser est un processus exceptionnel pour répondre à cette exigence. C'est pourquoi une substantielle partie de mes efforts a été consacrée au développement d'une source laser à l'IPN d'Orsay, ainsi qu'à la mise au point des techniques de sa caractérisation. Ces développements ont concerné l'élément d'intérêt qu'est l'étain. Nos travaux ont permis de produire un faisceau d'étain avec une efficacité d'ionisation proche à 50 % près du maximum d'ionisation possible, compte tenu des caractéristiques du laser utilisé.

Les résultats obtenus nous ont mené à envisager l'installation d'un laser plus performant pour des expériences en ligne auprès du séparateur PARRNe 2. Ces expériences pourront être réalisées avec l'accélérateur ALTO ou le Tandem. Pour cela, l'acquisition d'un laser plus performant (fréquence de répétition de 10 KHz, durée du pulse de 80 ns, puissance moyenne de 100 W) est en cours. Avec un tel laser nous visons des efficacités d'ionisation devant dépasser 10%.

La sélectivité exceptionnelle de l'ionisation résonante laser est actuellement altérée par l'ionisation de surface générée par le tube d'interaction laser. Les alcalins étant très abondamment produits par fission, il convient de réduire au mieux leur présence dans les faisceaux à délivrer. Pour résoudre ce problème nous envisageons d'étudier des tubes réfractaires à bas travail de sortie. Nous pouvons réaliser de tels tubes en recouvrant un métal réfractaire pur (Ta, W, Zn) par certains substrats obtenus par interaction à haute température avec des éléments comme l'oxygène, le carbone, et certains autres éléments électropositifs [Ari 01, Kös 01]. On peut obtenir ainsi un travail de sortie de l'ordre de 2 eV.

L'exploitation d'une source à photo-ionisation résonante est de premier intérêt pour les futures installations de faisceaux radioactifs comme SPIRAL-2 ou EURISOL. Elle est tout à fait adaptée pour une exploitation fiable sous forte irradiation et permet, tout comme la source

à ionisation de surface, de minimiser la quantité de matière activée, c'est à dire de déchets radioactifs. Cependant, il convient de garder en vue qu'une exploitation dans de telles conditions soulèvent des problèmes techniques à considérer dès à présent. Notamment, il convient de définir les techniques et procédures permettant des interventions nécessaires dans un environnement très radioactif, comme par exemple pour changer le hublot de transmission des faisceaux laser sur l'aimant de séparation.

L'ensemble des travaux réalisés pour cette thèse permet d'envisager très concrètement l'installation d'un complexe de séparation en ligne efficace et sélectif à l'IPN d'Orsay. Ce complexe exploitant l'accélérateur ALTO constituera un outil exceptionnel pour poursuivre la R&D sur les faisceaux d'isotopes riches en neutrons.

# Bibliographie

- [Acc 61] A. Accary, Génie atomique, Tome IV, Volume I, Presses Universitaire de France (1961).
- [Alt 98] G.D Alton *et al.*, A new concept positive (negative) surface ionization source equipped with high porosity ionizer, Nucl. Inst. Meth. **B 142** (1998) 578-591.
- [Alv 68] T. Alväger *et al.*, On-line studies of mass separated xenon fission products, Phys. Rev. **167** (1968) 1105.
- [And 91] H. Andreasen *et al.*, Mixtures of molten metals and graphite as targets for on-line mass separators, Nucl. Inst. and Meth. **B 58** (1991) 247-251.
- [Anl 95] Concept for an advanced exotic beam facility based on ATLAS, Physic division, Argonne national Laboratory (1995).
- [Ari 97] J. Arianer, Les sources de particules chargées, (1997) IPNO 97-01.
- [Aud 03] G. Audi, Rapport Scientifique sur l'Accélérateur Linéaire auprès du Tandem d'Orsay (ALTO), Institut de Physique Nucléaire d'Orsay (2003).
- [Baj 03] O. Bajeat *et al.*, Optimization of ISOL UCx targets for fission induced by fast neutrons or electrons, Proceedings of the NANUF03 Conference, Bucharest, September 7-12 (2003) World Scientific.
- [Bar 96] G. Barreau, Production d'énergie nucléaire et traitement des déchets, Ecole Joliot-Curie de physique nucléaire (1996).
- [Bey 77] G.J. Beyer and A.F Novgorodov, Trace diffusion of différent nuclear reaction products in Polycrystalline tantalum, Nucl. Inst. and Meth. **174** (1980) 257-269.
- [Bez 97] V.I. Beznosjuck *et al.*, Reduction of the thermoionic current in the laser ion source, Nucl. Inst. Meth. **B 126** (1997).
- [Bim 95] R. Bimbot, Nuclear physics with radioactive beams, Appl. Radiat. Isot. **46** (1995) 537-542.
- [Bla 03] F.L. Blanc, La spectroscopie laser appliqué à la physique nucléaire, Habilitation à diriger les recherches en sciences physiques de l'Université Paris VII, (2003) IPNO-T-01-03.
- [Bla 03a] K. Blaum *et al.*, A novel scheme for highly selective laser ion source, Nucl. Inst. Meth. **B 204** (2003) 331-335.
- [Bla 03b] K. Blaum *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. **B 204** (2003) 478-481.
- [Bjø 86] T. Bjørnstad *et al.*, Methods for production of intense Beams of unstable nuclei: New developments at ISOLDE, Phys. Scri. **34** (1986) 578-590.
- [Bor 56] N. Bohr and J.A. Wheeler, The mechanism of nuclear fission, Phys. Rev. **56** (1939) 426.
- [Bro 83] U. Brosa and S. Grossmann, In the exit channel of nuclear fission, Z. Phys A **310** (1983) 177-187.
- [Bro 01] B.A. Brown, the nuclear shell model towards the drip lines, Prog. Part. Nucl. Phys. **47** (2001) 517-599.
- [Cal 80] J.T Caldwell and E.J. Dowdy, Giant resonance for the actinide nuclei : Photoneutron and photofission cross sections for  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ , and  $^{232}\text{Th}$ , Phys. Rev. **C 21** (1980) 1215-1231.
- [Cam 67] I.E. Campbell and E.M. Sherwood (ed.), High-temperature materials and technology, ed. J. Wiley & sons (1967).

- [Car 69] G.C. Carlson *et al.*, Half-lives of some short-lived mass separated gaseous fission products and their daughters, Nucl. Phys. **A 125** (1969) 305-311.
- [Car 78] L.C. Carraz *et al.*, Fast release of nuclear reaction products from refractory matrices, Nucl. Inst. and Meth. **148** (1978) 217-230.
- [Car 79] L.C. Carraz, S. Sundel, H.L. Ravn, High-temperature carbide for fast on-line mass separation of alkali and noble gas elements, Nucl. Inst. and Meth. **158** (1979) 69-80.
- [Cas 00] R.F. Casten, B.M. Sherrill, The study of exotic nuclei, Prog. Part. Nucl. Phys. **45** (2000) S171- S233.
- [Char 98] M. Chartier *et al.*, The masses of  $^{70-71}\text{Se}$ , Nucl. Phys. **A 637** (1998) 3-14.
- [Che 01] P.Y. Chevalier et E. Fischer, Thermodynamic modelling of C-U and B-U binary systems, Jour. Nucl. Mat. **288** (2001)100-129.
- [Cla 98] F. Clapier *et al.*, Exotic beams produced by fast neutrons, Phys. Rev. ST-AB **1** (1998) 013501.
- [Dez 90] A.M.G. Dezfuli, Characteristics of laser desorption ion source, Thèse de l'Université McGill, Montreal (1990).
- [Dob 94] J. Dobaczewski *et al.*, Nuclear shell structure at particle drip lines, Phys. Rev. Let. **72** (1994) 981-984.
- [Dia 99] W.T Diamond, A radioactive ion beam facility using photofission, Nucl. Inst. and Meth. **A 432** (1999) 471-482.
- [Eic 85] B. Eichler, S. Hübener, H. Roßbach, adsorption flüchtiger metalle aut metallischen oberflächen und ihre anwendung in der kernchemie, Zentralinstitut für Kernforschung, Rossendorf, report ZFK 561 (1985).
- [Eng] R.T. England, B.F. Rider, Los Alamos Laboratory report LA-UR-94-3106, <http://ie.lbl.gov/fission/238uh.txt>.
- [Ehr 72] B. Ehrenberg, S. Amiel, Independent yields of krypton and Xenon isotopes in thermal-neutron fission of  $^{235}\text{U}$  observation of an odd-even effect in the element yield distribution, Phys. Rev. **C 6** (1972) 618-628.
- [Ess 03] S. Essabaa *et al.*, Photo-fission for the production of radioactive beams ALTO project, Nucl. Inst. Meth. **B 204** (2003) 780-784.
- [EUR] EURISOL Project <http://www.ganil.fr/eurisol/index.html>
- [Fed 00] V.N Fedoseyev *et al.*, The ISOLDE laser ion source for exotic nuclei, Hyp. Int. **127** (2000) 409-416.
- [Fick 85] A. Fick, Ann. Physik Leipzig **170** (1885) 159.
- [Fra 47] S. Frankel and N. Metropolis, Calculation in the liquid drop model of fission, Phys. Rev. **72** (1947) 914-924.
- [Fuj 81] M. Fujioka *et al.*, Diffusion of radioisotopes from solids in the form of foils, fibres and particles, Nucl. Inst. and Meth. **186** (1981) 409-412.
- [GAN 90] GANIL, Rep. A joint national laboratory IRF (CEA)- IN2P3(CNRS), Exotic nuclei an even more detailed assessment of their properties (1990) 12.
- [Gar 97] J.D. Garrett, The latest from the new HOLIFIELD radioactive ion beam facility at Oak Ridge National Laboratory, Nucl. Phys. (1997) 3c-10c.
- [Gro 98] M. GRöß, The status of the Munich fissions fragment accelerator project, Proc. Int. Workshop, Nuclear fission and fission-product spectroscopy, AIP Conference Proceedings 447, (1998) 126-134.
- [Hab 97] D. Habs *et al.*, The Rex-ISOLDE Project, Nucl. Phys. **A 616** (1997) 29c-38c.



- [Hah 38] O. Hahn et F. Strassman, naturwiss 26 (1938).
- [Han 73] Handbook of chemistry and physics, 54<sup>th</sup> Edition 1973-1974, CRC PRESS.
- [Hen 97] W.F. Henning, Physics With energetic radioactive ion beams, Nucl. Inst. Meth. **B 126** (1997) 1-6.
- [Hen 01] S. Henry, Piégeage et refroidissement d'ions exotiques pour la mesure de masse, Thèse de l'Université Louis Pasteur (2001).
- [Her 01] F. Herfurth *et al.*, A linear radiofrequency ion trap for accumulation, bunching and emittance improvement of radioactive ion beams, Nucl. Inst. Meth. **A 469** (2001) 254-275.
- [Hof 84] P. Hoff *et al.*, Release of nuclear reaction products from refractory compounds, Nucl. Inst. and Meth. **221** (1984) 313-329.
- [Hof 96] S. Hofmann *et al.*, The new element 112, Z. Phys. (1996) 229-230.
- [Hur 77] G. Hurst *et al.*, One-atom detection using resonance ionization spectroscopy, Phys. Rev. A 15 (1977) 2283-2292.
- [Hur 79] G.S. Hurst, M. G. Payne, S.D Kramer, J.P. Young, Resonance ionization spectroscopy and one-atom detection, Rev. Mod. Phys. **51** (1979) 767-819.
- [Ibr 02] F. Ibrahim *et al.*, Photofission for the production of radioactive beams: Experimental data from an on-line measurement, Eur. Phys. **A 15** (2002) 357-360.
- [Ion 69] N.I. Ionov, E.N. Lebedeva, M.A. Mittsev, Surface ionization of easily ionized atoms in the threshold temperature region, Sov. Phys. Tech. **39** (1969) 1423-1431.
- [ISA] <http://www.triumf.ca/isac/5-oct-2001-news.html>
- [Ker 96] P. Kern, Analyse chimique de surfaces par spectrométrie d'ionisation résonante associée à la pulvérisation ionique, Thèse de l'Université Louis Pasteur de Strasbourg (1995), Phase 96-02.
- [Kin 23] K. H. Kingdon, Irving Langmuir, Phys. Rev., 21 (1923) 380.
- [Kir 86] R. Kirchner *et al.*, An ion source with storage capability for bunched beam release and controlled chemical separation, Nucl. Inst. and Meth. **A 247** (1986) 265-280.
- [Kir 90] R. Kirchner, On the thermoionization in hot cavities, Nucl. Inst. Meth. **A 292** (1990) 203-208.
- [Kir 92] R. Kirchner, on the release and ionization efficiency of catcher-ion-source systems in isotope separation on-line, Nucl. Inst. and Meth. **B 70** (1992) 186-199.
- [Kir 97] R. Kirchner, Release studies of elementary and metal-fluoride ions at the GSI on-line mass separator, Nul. Inst. Meth. **B 126** (1997) 135-140.
- [Klu 85] H.J. Kluge *et al.*, Laser ion sources, Pro. Acc. Rad. Beams Workshop. TRI 85-1. 119 (1985) CERN.
- [Kof 51] O. Kofoed-Hansen and K.O. Nielson, K.D. Vidensk, Selsk. Mat. Fys. Medd. **26** (1951) 7.
- [Kös 98] U. Köster, Ion sources for fission fragment accelerators, Rev. Scien. Inst. **69** (1998) 1316-1321.
- [Kös 99] U. Köster, Yields and spectroscopy of radioactive isotopes at LOHENGRIN and ISOLDE, Thèse de l'université München eingereicht (1999).
- [Kös 01] U. Köster, ISOLDE target and ion source chemistry, Radi. Acta. **89** (2001) 1-8.
- [Kös 02] U. Köster, Resonance ionization laser ion sources, Nucl. Phys. **A 701** (2002) 441c-451c.
- [Kös 03] U. Köster *et al.*, en cours.

- [Lan 99] K. Langanke, Nuclear astrophysics, Nucl. Phys. **A 654** (1999) 330-349.
- [Lan 00] K. Langanke et G. Martinez-Pinedo, Shell-model calculations of stellar Weak interaction rates: II. Weak rates for nucleide in the mass range  $A = 45-65$  in supernovae environments, Nucl. Phys. **A 673** (2000) 481-508.
- [Lan 01] F. Landré, Production de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL pour SPIRAL, Thèse de l'Université de Caen 2001, GANIL-T-03- 01.
- [Lat 75] A. Latuszynski, V.I. Raiko, Studies of the source With surface-volume ionization, Nucl. Inst. and Meth. **125** (1975) 61-66.
- [Lau 00] C. Lau, Etude de la production de faisceaux riches en neutrons par fission induite par des neutrons rapides, Thèse de l'Université de Paris 7, IPNO-T-00-08.
- [Lau 03] C. Lau, F. Hosni *et al.*, Production of neutron-rich surface-ionized nuclides at PARRNe, Nucl. Inst. and Meth. **B 204** (2003) 257-260.
- [Lec 97] N. Lecesne., Etude de la production d'ions radioactifs multichargés en ligne, Thèse de l'Université de Caen 1997, GANIL-T-08-97.
- [Lef 03] H. Lefort, Conception et mise au point d'un émittance-mètre, Mémoire d'Ingénieur du Conservatoire National des arts et Métiers (2003).
- [Let 87] V.S. Letokhov, Laser Photoionisation spectroscopy, Academic Press, London (1987).
- [Lid 96] Handbook of chemistry and physics 76th edition, D.R Lide ed., CRC Press (1995-1996).
- [LIN 02] LINAG Phase I, Rapport technique GANIL (2002),  
<http://www.ganil.fr/research/sp/reports/files/LINAGPhaseI.pdf>
- [Lis 91] P.W. Lisowski et al., Proceedings of the specialists meeting on neutrons cross section standards for the energy region above 20 MeV Uppsala Sweden 1991, OECD/NEA Repport NEANDC-305-U, (1991) 177-186.
- [Mau 98] L. Manoury, Production de faisceaux d'ions radioactifs multichargés pour SPIRAL : Etude et réalisation du premier ensemble cible-source, Thèse de l'Université de Caen 1998, GANIL T 98 01.
- [Mai 75] J. Maire, le carbone en électronique, Technique de l'ingenieur (1975) D 296.
- [Mar 67] J.L. Margrave (ed.), The characterizaion of high-temperaure vapors, J. Wiley & sons (1967).
- [Meh 96] T. Mehren et al., Beta-decay half-lives and neutrons-emission probabilities of very neutron-rich Y to Tc isotopes, Phys. Rev. Lett. **77** (1996) 458-461.
- [Mei 39] L. Meitner, O.R. Frish, Disintegration of uranium by neutron: a new type of nuclear reaction, Nature **143** (1939) 239-240.
- [Mén 99] S. Ménard *et al.*, Fast neutron forward distribution from C, Be and U thick targets bombarded by deutrones, Phys. Rev. Spec. Top.-AB **2** (1999) 33501.
- [Mir 01] M. Mirea *et al.*, Modeling a neutron-rich nuclei source, Eur. Phys. J. **A 11** (2001) 59-78.
- [Mir 03] M. Mirea et al., Exploratory analysis of a neutron-rich nuclei source based on photo-fission, Nucl. Inst. Meth. **B 201** (2003) 433-448.
- [Mis 93] V.I. Mishin *et al.*, Chemically selective laser ion-source for the CERN-ISOLDE on-line mass separator facility, Nucl. Inst. Meth. **B 73** (1993) 550-560.

- [Mue 00] A.C. Mueller, Recent advances in exotic nuclear beams, *Hyperfine interaction* **127** (2000) 21-29.
- [Mue 01] A.C. Mueller, Radioactive beams in France, *Prog. Part. Nucl. Phys.* **46** (2001) 359-374.
- [Nie 01] A. Nie et al., Beam cooler for low-energy radioactive ions, *Nucl. Inst. Meth. A* **469** (2001) 244-253.
- [Nol 93] J. A. Nolen, Third international conference on radioactive nuclear beam, D.J. Morrissey (ed.), Edition Frontières, Gif-sur Yvette (1991).
- [Nol 98] J.A. Nolen, Exotic nuclei and atomic masses, AIP conference proceedings (1998) p. 953.
- [Oga 02] Yu.Ts. Oganessian *et al.*, RIB production with photofission of uranium, *Nucl. Phys. A* **701** (2002) 87c-95c.
- [Pat 69] A. Pattoret, Etude thermodynamiques par spectrométrie de masse sur les systèmes U-O et U-C, Thèse de doctorat en sciences chimiques (1969) Université libre de Bruxelles.
- [Pas 61] P. Pascal, Nouveau traité de chimie minérale, Tome XV, 2d fascicule, Editeur Masson & Cie (1961).
- [Pas 67] P. Pascal, Nouveau traité de chimie minérale, Tome XV, 4d fascicule, Editeur Masson & Cie (1967).
- [PAR 03] PARRNe, <http://ipnweb.in2p3.fr/%7edivac/instrumentation/parrne/parrne.html>
- [Pau 00] N. Pauwels, *Etude de la Production de Neutrons Rapides à partir de Faisceaux de Deutons en Vue de la Mise en Oeuvre de Faisceaux d'Ions Lourds Radioactifs*, Thèse Université PARIS XI Orsay (2000) IPNO 00 12.
- [Qia 03] Y.Z. Qian, The origin of the heavy elements : recents progress in the understanding of the r-process, *Prog. Part. Nucl. Phys.* **50** (2003) 153-199.
- [Rab 98] J.F. Rabasse, Slabview 1.2, (98) S2I-IPNO.
- [Ram 56] N.F. Ramsey, *Molecular Beams*, ed. Clarendon press (1956).
- [Rau 97] T. Rauscher *et al.*, Uncertainties in direct neutron capture calculations due to nuclear structure models, *Nucl. Phys. A* **621** (1997) 327-330.
- [Rav 75] H.L. Ravn, S. Sundell, L. Westgaard, Target techniques for the ISOLDE on-line separator, *Nucl. Inst. and Meth.* **123** (1975) 131-144.
- [Rav 87-a] H.L. Ravn and B.W Allardyce, *Treatise on heavy-ion science*, Edition D.A. Bromley (Plenum, New York), Volume 8, Nuclear far from stability, (1989).
- [Rav 87-b] H.L. Ravn *et al.*, Use refractory oxides, carbides and borides as targets for on-line mass separation, *Nucl. Inst. and Meth. B* **26** (1987) 183-189.
- [Roß 84] H. Roßbach, B. Eichler, S. Hübener, H. Roßbach, Adsorption flüchtiger metalle aut metallischen oberflächen und ihre anwendung in der kernchemie, Zentralinstitut für Kernforschung, Rossendorf, report ZFK 527 (1984)
- [Roe 95] E. Roekl, Recent experiments with radioactive ion beams at GSI, *Nucl. Phys. A* **588** (1995) 41c-48 c.
- [Rou 73] J.P. Roux, M. Valladon, Principales propriétés physiques des fluorures et oxyfluorures des produits de fission, Rapport CEA-R-4424 73-02 (1973).
- [Rou] B. Roussière, Communication privée.
- [Rou 02] B. Roussière *et al.*, Release properties of UCx and molten U targets, *Nucl. Inst. and Meth. B* **194** (2002) 151-163.

- [Rub 88] V.A. Rubchenya and S.G Yavshits, Dynamic treatment of ternary fission, *Z. Phys A* 329 (1988) 217-228.
- [Rud 65] G. Rudstam, Project for an isotope separator on-line with the CERN synchro-cyclotron, *Nucl. Inst. and Meth.* **38** (1965) 282-290.
- [Rud 81] G. Rudstam, P. Aagaard, P. Hoff, B. Johanson, H.U. Zwicky, Chemical separation combined with an ISOL-system, *Nucl. Inst. and Meth.* **186** (1981) 365-379.
- [Rud 87] G. Rudstam, The determination of nuclear reaction yields by means of an isotopes separator on line ISOL system, *Nuc. Inst. Meth. A* **256** (1987) 465-483.
- [Sal 90] E.B. Saloman, Topics in laser spectroscopy, *Spectrochimica Acta*. Vol. 45 B, Nos ½, (1990).
- [Sal 92] E.B. Saloman, Topics in laser spectroscopy, *Spectrochimica Acta*. Vol. 47 B, No 4, (1992).
- [Sal 94] E.B. Saloman, Topics in laser spectroscopy, *Spectrochimica Acta*. Vol. 49 B, Nos 3, (1994).
- [Ser 47] R. Serber, The production of high energy neutrons stripping, *Phys. Rev.* Vol 72 , N° 11 (1947) 1008.
- [Shu 69] F.A. Shunk, Constitution of binary alloys, 2nd supplement, McGraw-Hill (1969).
- [SPI 01] SPIRAL II, Preliminary design study, Rep. GANIL (2001),  
<http://www.ganil.fr/research/developments/spiral2/index.html>
- [SPI 02] SPIRAL II. Electronoption preliminary design study, GANIL(2002),  
<http://www.ganil.fr/research/developments/spiral2/index.html>.
- [SPI 2] The SPIRAL 2 project, Intermediate report CEA, IN2P3 (2004).
- [Tan 98] I. Tanihata *et al.*, Exotic nuclei and atomic masses, AIP conference proceedings (1998) p. 943.
- [Tan 99] I. Tanihata, Reactions with radioactive ion beams, *Nucl. Phys. A* **654** (1999) 235c-251c.
- [Tac 95] . Tachibana et M. Arnould, Beta decay properties of exotic nuclei and astrophysical r-process, *Nucl. Phys. A* **588** (1995) 333c-338c.
- [Ver 03] D. Verney *et al.*, Study of the N = 50 shell closure close to <sup>78</sup>Ni, V. Latinamerican Symposium on Nuclear Physics Santos (Brazil) 1-5 Septembre (2003), *Soumis Brazilian Journal of Physics*.
- [Vig 95] B. Vignon, Projet PIAFE rapport technique de la phase 1, Institut des sciences nucléaires de Grenoble, (1995).
- [Vie 86] D.J. Vieira *et al.*, Direct mass measurements of neutron- rich light nuclei near N = 20 , *Phys. Rev. Lett.* **57** (1986) 3253-3256.
- [Waa ] B. Waast *et al.*, Status report of Orsay MP 9, *Nucl. Inst. Meth. A* **287** (1990) 26-30.
- [Wag 91] C. Wagemans, The nuclear fission process, Ed. CRC Press (1991).
- [Wil 67] L. Wilets, Theories of nuclear fission, Ed. Clarendon Press Oxford (1964).
- [Wei 35] C.F. Weizsäcker, *Z. Phys.* **96** (1935) 431.
- [Wen 03] F. Wenander, J. Lettry, M. Lindroos, Transverse emittance investigation of the ISOLDE target-ion sources, *Nucl. Inst. Meth. B* **204** (2003) 261-266.

## Résumé

Ces travaux s'inscrivent dans le cadre du programme de R&D PARRNe (Production d'Atomes Radioactifs Riches en Neutrons). Ce programme vise d'une façon générale à déterminer les conditions optimales pour produire d'intenses faisceaux d'isotopes riches en neutrons. Cette thèse traite des multiples aspects techniques liés à la production d'isotopes radioactifs séparés en ligne (ISOL). Elle porte principalement sur le développement de l'ensemble cible-source qui est l'élément clé pour les projets comme SPIRAL-2 ou EURISOL.

La première partie présente les différentes méthodes utilisant la fission comme réaction exploitée en ligne ainsi que leur comparaison: fission thermique, fission induite par des neutrons rapides et photofission. L'expérience faite au CERN a permis de valider la photofission comme mode prometteur pour la production d'ions radioactifs, c'est pour cela que l'IPN d'Orsay a décidé de construire un Accélérateur Linéaire d'électrons auprès du Tandem d'Orsay (ALTO).

La deuxième partie de cette thèse a porté sur le développement de cibles d'uranium. Des techniques d'analyse comme la diffraction X et la Microscopie Electronique à Balayage ont été utilisées. Elles ont permis de déterminer les caractéristiques chimiques et structurales de cibles de carbure d'uranium portées à différentes températures de chauffage. Après la production, le processus d'ionisation est étudié. Deux types de sources ont été mises en œuvre : La première est une source à ionisation de surface et la deuxième est une source basée sur l'ionisation résonante par laser. Ces deux types de sources seront utilisées pour le projet ALTO.

## Summary

The works were carried out in the framework of the R&D program PARRNe (Production d'Atomes Radioactifs Riches en Neutrons). This program aims to determine optimal conditions to produce intense beams of neutron-rich isotopes. This thesis treats multiple technical aspects related to the production of separate radioactive isotopes in line (ISOL). It deals mainly with the development of the target-source unit which is the key element for projects such as SPIRAL-2 or EURISOL.

The first part presents the various methods using fission as production mode and compares them: fission induced by thermal neutrons, induced by fast neutrons and photofission. The experiment carried out at CERN validated the interest of the photofission as a promising production mode of radioactive ions. That is why IPN of Orsay decided to build a linear electron accelerator at the Tandem d'Orsay (ALTO). The second part of this thesis deals with the development of uranium targets. The X-rays diffraction and Scanning Electron Microscopy have been used as analysis techniques. They allowed to determine the chemical and structural characteristics of uranium carbide targets as function of various heating temperatures. After the production, the process of ionization has been studied. Two types of ion source have been worked out: The first one is a surface ion source and the second one is a source based on resonant ionization by laser. These two types of sources will be used for the ALTO project.